# DIE VERWENDUNG VON (n,p)- UND (n,α)-REAKTIONEN FÜR DIE MESSUNG VON REICHWEITE- UND DIFFUSIONS-PROFILEN UND CHANNELING- UND BLOCKING-EFFEKTEN

INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Dietmar F i n k
aus Berlin

1974

# DIE VERWENDUNG VON (n,p)- UND (n,α)-REAKTIONEN FÜR DIE MESSUNG VON REICHWEITE- UND DIFFUSIONS-PROFILEN UND CHANNELING- UND BLOCKING-EFFEKTEN

INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Dietmar F i n k
aus Berlin

1. Referent: Dr. Biersack

2. Referent: Dr. Recknagel

UNIV. LEIDEN BIBL.

Tag der Einreichung der Arbeit: 1o.6.1974

Tag der mündlichen Prüfung: 1.7.74, $11^{00}$ Theoret.Phys., Prof.Gabriel

4.7.74, $11^{00}$ Exper.-Physik, Dr.Biersack und Recknagel

5.7.74, $9^{00}$ Geophysik, Prof. Giese

Inhalt


| | | Seite |
|---|---|---|
| | Einleitung | 3 |
| A | Bremsvermögen und Tiefenverteilungen | |
| | 1 Abbremskraft | 6 |
| | 1.1 Grundlagen | 6 |
| | 1.2 Messungen | 8 |
| | 2 Reichweiten- und Strahlenschadenverteilungen | 11 |
| | 2.1 Grundlagen | 11 |
| | 2.2 Messungen | 13 |
| B | Diffusion | |
| | 1 Theoretischer Teil | 20 |
| | 1.1 Atomare Diffusionstheorie | 20 |
| | 1.2 Diffusionsprofile | 22 |
| | 2 Experimente zur Diffusion | 24 |
| | 2.1 Experimentelle Grundlagen | 24 |
| | 2.2 Ausheizexperimente mit Nb(Li) | 25 |
| | 2.3 Ausheizexperimente mit Ag(Li) | 30 |
| | 2.4 Korrosionseffekte | 32 |
| | 3 Anwendung der Diffusionsergebnisse | 35 |
| C | Channeling und Blocking | |
| | 1 Theoretischer Teil | 37 |
| | 1.1 Einleitung | 37 |
| | 1.2 Der Channeling-Effekt | 37 |
| | 1.2.1 Qualitative Beschreibung | 37 |
| | 1.2.2 Grundlagen der Channeling-Theorie | 39 |
| | 1.2.3 Der kritische Winkel | 39 |
| | 1.3 Der Blocking-Effekt | 41 |
| | 1.3.1 Qualitative Beschreibung | 41 |
| | 1.3.2 Grundlagen der Blocking-Theorie | 43 |
| | 1.4 Die Tiefenabhängigkeit der Gittereffekte | 44 |
| | 1.5 Die Reversibilitätsregel | 46 |
| | 1.6 Gittereffekte nach Kernreaktionen mit Neutronen | 46 |

Seite

2 Experimentelle Grundlagen 48

2.1 Einführung 48

2.2 Der Folienapparat 49
2.2.1 Einzelheiten des Geräts 49
2.2.2 Die Teilchenregistrierung mit Plastikdetektoren 53

2.3 Der Detektorapparat 55
2.3.1 Der Aufbau des Geräts 55
2.3.2 Die Justierung der Kristalle 60
2.3.3 Die Teilchenregistrierung 65

2.4 Die Auflösung 65

3 Die Versuche 67

3.1 Untersuchungen am System LiF 67
3.1.1 Messungen 67
3.1.2 Auswertung und Diskussion 78

3.2 Untersuchungen am System Ge(Li) 83

3.3 Untersuchungen am System Nb(Li) 84

3.4 Untersuchungen an borhaltigen Kristallen 87

Resumé 91

Danksagung 93

Literatur 95

Lebenslauf 98

## Einleitung

Bei exoenergetischen (n,p)- und (n,α)-Reaktionen wird ein thermisches Neutron mit i.a. sehr hohem Wirkungsquerschnitt eingefangen (Größenordnung kilobarn). Der gebildete Zwischenkern zerfällt unter Emission des Rückstoßkerns und eines Protons bzw. α-Teilchens. Die gesamte hierbei freigesetzte kinetische Energie liegt in der typischen Größenordnung von 1 bis 5 MeV.

Im Festkörper findet dieser Prozeß am ursprünglichen Ort des Targetatoms statt, da das thermische Neutron so wenig Impuls überträgt, daß eine Versetzung des Zwischenkerns ausgeschlossen ist. Diese Gegebenheiten sind günstig für die Untersuchung von Abbremskräften, Reichweite- und Diffusionsprofilen sowie zur Bestimmung von Gitterpositionen durch Channeling oder Blocking in Einkristallen. Zu allen hier angeschnittenen Themenkreisen werden in dieser Arbeit einige Experimente beschrieben.

In Tab. 1 sind die Daten der hier behandelten Nuklide $^{6}Li$ und $^{10}B$ sowie von $^{3}He$ zusammengestellt. Abb. 1 a) bis d) zeigt die aus den Nuclear Data Sheets [1] entnommenen Niveauschemata für $^{6}Li(n,\alpha)T$ und $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ sowie die bei den hier beschriebenen Experimenten auftretenden Neutronen-Einfangs-Konkurrenz-Reaktionen von $^{7}Li$ und $^{11}B$.

Tabelle 1: Zusammenstelung einiger Nuklide mit hohem Wirkungsquerschnitt für (n,p)- und (n,α)-Reaktionen.

| Nuklid | Konzentr. c[%] | Reaktion | W.Q. b [barn] | $Z_1$ | $Z_2$ | $M_1$ A.M.E. | $M_2$ | Energien 1 [MeV] | 2 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| $^{3}He$ | 0,000137 | (n,p)T | 5327 | 1 | 1 | 1 | 3 | 0.57 | 0.19 |
| $^{6}Li$ | 7,42 | (n,α)T | 953 | 2 | 1 | 4 | 3 | 2.06 | 2.73 |
| $^{10}B$ | 19,61 | (n,α)$^{7}Li$ | 3837 { 6% | 2 | 3 | 4 | 7 | 1.78 | 1.01 |
| | | | 3837 { 94% | 2 | 3 | 4 | 7 | 1.46 | 0.83 |

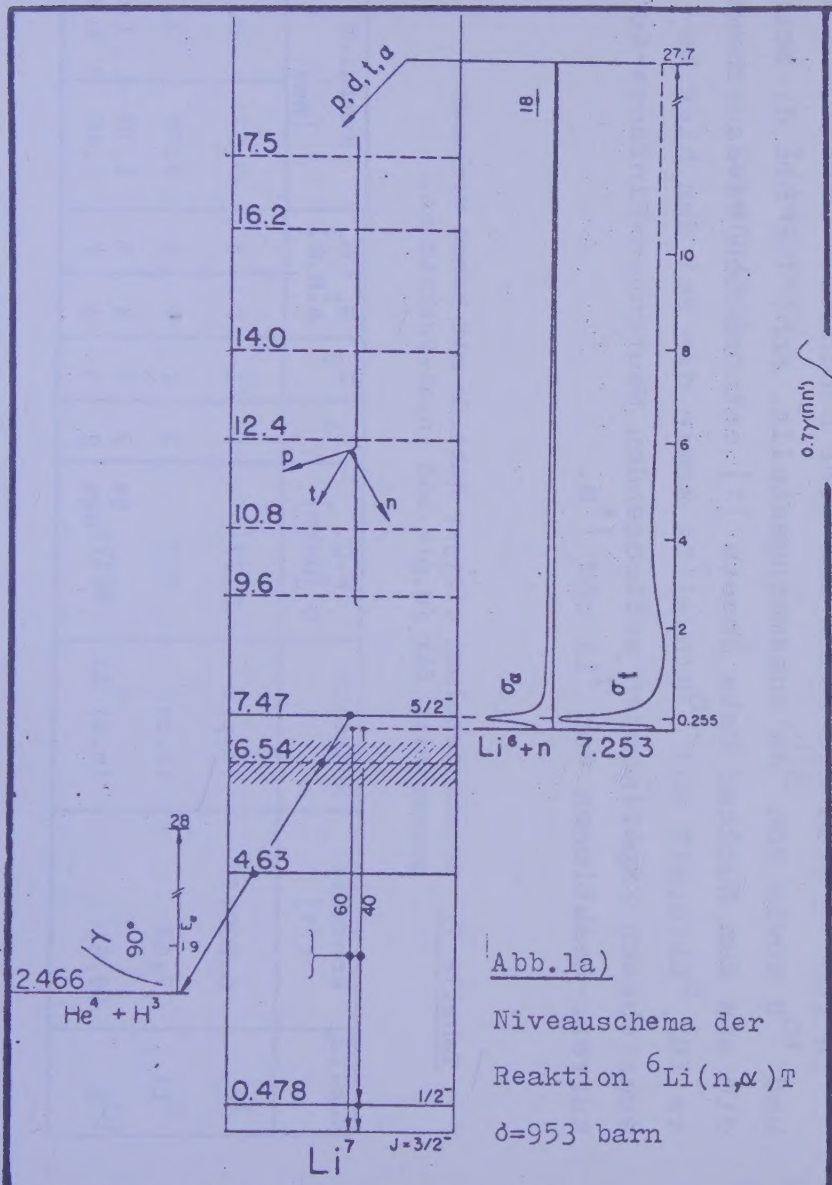



Abb.1a)

Niveauschema der Reaktion $^{6}Li(n,\alpha)T$

$\delta$=953 barn

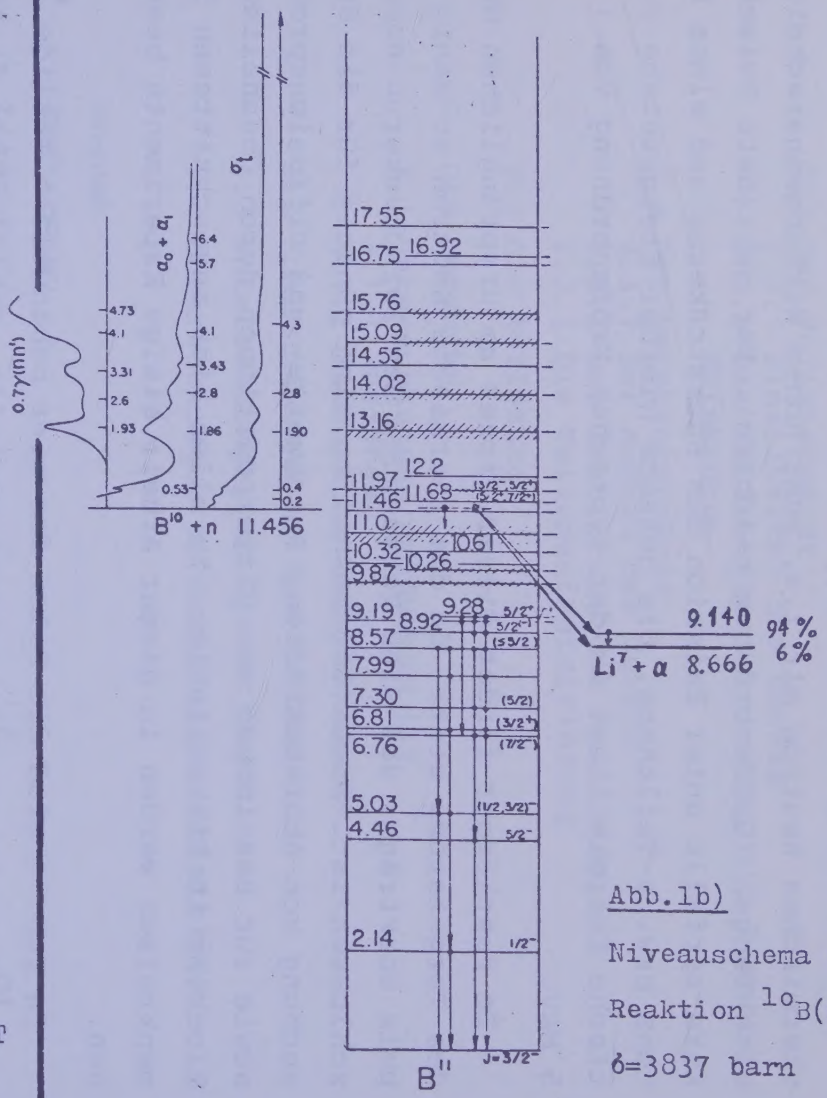



Abb.1b)

Niveauschema der Reaktion $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$

$\delta$=3837 barn

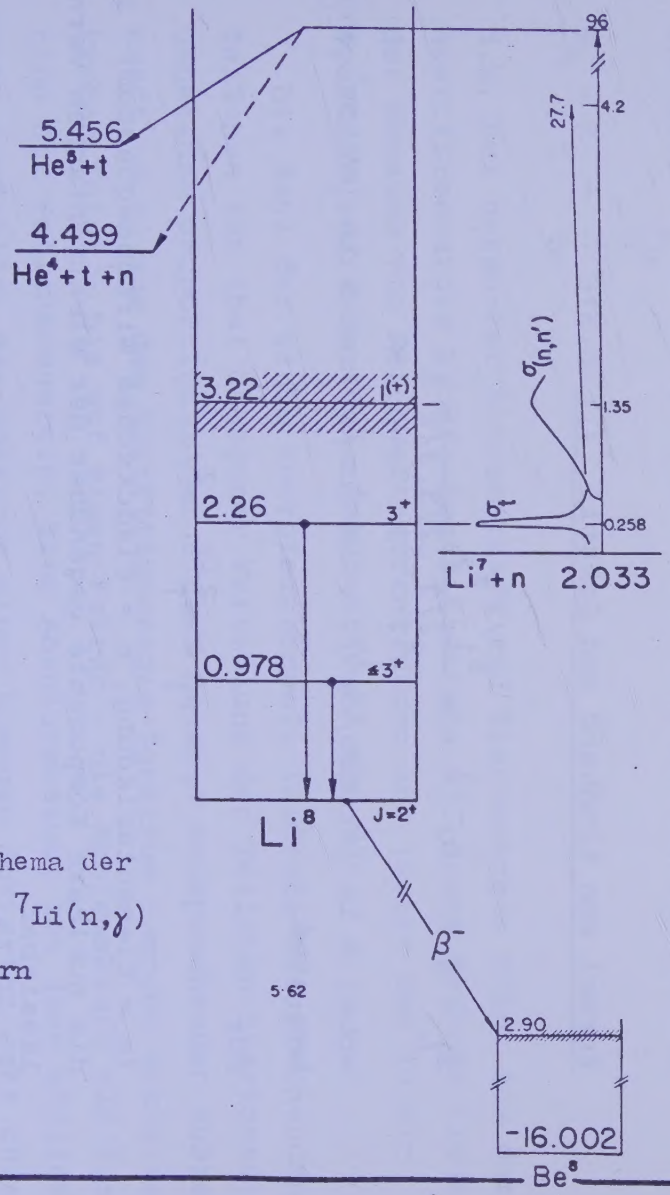



Abb.1c)

Niveauschema der

Reaktion $^{7}Li(n,\gamma)$

$\delta$=37 mbarn

5·62

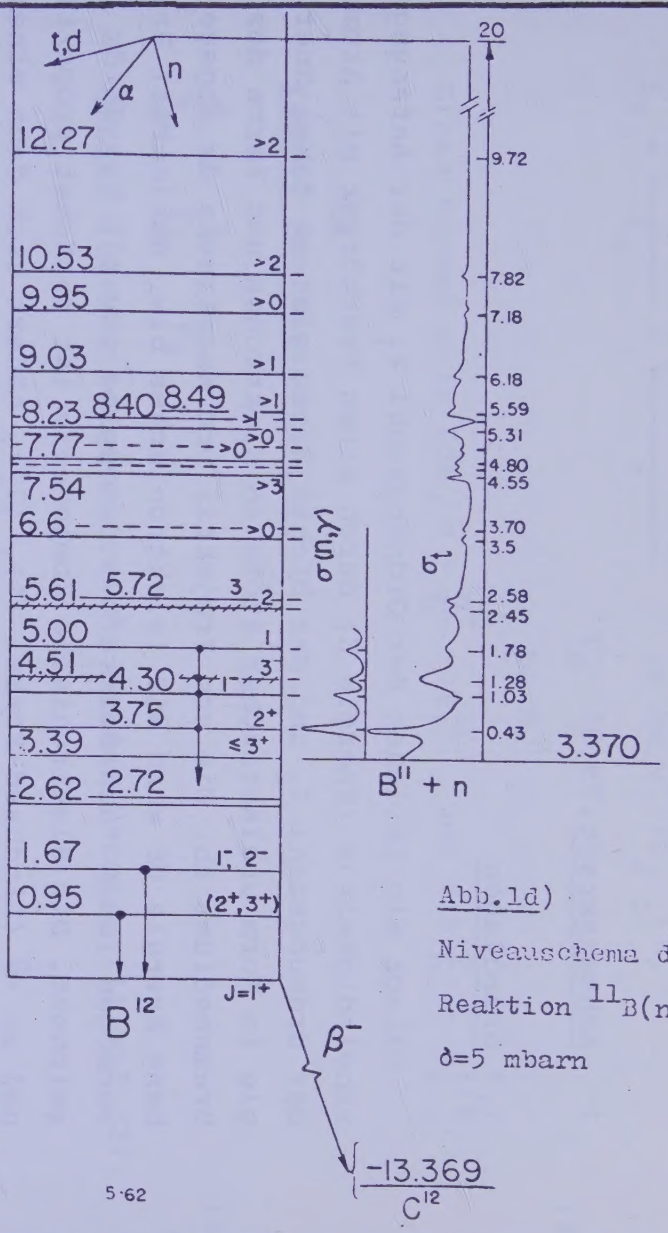



Abb.1d)

Niveauschema der

Reaktion $^{11}B(n,\gamma)$

$\delta$=5 mbarn

5·62

## Teil A: Bremsvermögen und Tiefenverteilungen

### 1 Abbremskraft

#### 1.1 Grundlagen

Fliegt ein Teilchen der Ordnungszahl $Z_1$ mit der Anfangsgeschwindigkeit v (Energie E) durch einen Festkörper mit Atomen der Ordnungszahl $Z_2$ und der Dichte N, so gibt es dabei Energie in Form unelastischer Stöße an Elektronen und Kerne des Bremsmediums ab. Die vom Projektil pro Wegstrecke dx abgegebene Energie dE wird als (elektronisches bzw. nukleares) Bremsvermögen (auch "Abbremskraft", "stopping power") $S = dE/dx$ bezeichnet. Die elektronische Komponente ist zunächst proportional zu $\sqrt{E}$ (Lindhard-Formel (1), [2]), nähert sich dann einem Übergangsbereich mit einem Maximum (Biersack-Interpolationsformel (3), [3]) und fällt dann bis zum Einsetzen relativistischer Effekte mit $\frac{\ln E}{E}$ ab (Bethe-Formel (2), [4]). Die die Abbremskraft beschreibenden Formeln lauten im einzelnen:

Formel von Lindhard und Scharff [2]:

$$S_L = 8{,}7 \cdot 10^{-23} \cdot N \frac{Z_1^{7/2} Z_2}{(Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3})^{3/2}} v \quad , \qquad (1)$$

wobei N in [Atomen/$cm^3$], v in [cm/s] und S in [eV/cm] angegeben sind.

Für

$$v > v_1 = Z_1^{2/3} \cdot e^2/h$$

(e = Elementarladung, h = Plancksches Wirkungsquantum) ist die nukleare Komponente gegenüber der elektronischen vernachlässigbar.

Formel von Bethe [4]:

$$S_B = \frac{8\pi z_1^2 e^4 N}{I_o} \cdot \frac{\ln(\varepsilon+1+b/\varepsilon)}{\varepsilon}\,, \quad \varepsilon = 2m_o v^2/(Z_2 I_o)\,, \quad I_o \approx 10\ \text{eV}, \quad b \approx 5. \tag{2}$$

Diese Formel gilt für $v > \frac{e^2}{h} \cdot Z_1^{2/3}$ und $v > \frac{e^2}{h} \cdot Z_2^{1/2}$.

Formel von Biersack [3]:

$$\frac{1}{S_e} = \frac{1}{S_L} + \frac{1}{S_B} \tag{3}$$

umfaßt die Gültigkeitsbereiche beider Formeln (1) und (2).

Startet in einem Festkörper in der Tiefe $x_o$ ein senkrecht zur Oberfläche fliegendes Teilchen der Anfangsenergie $E_o$, so besitzt es beim Durchqueren der Oberfläche nur noch die Austrittsenergie

$$E_A = E_o - \int_o^{x_o} S(E)\,dx\,,$$

d.h. bei bekannter Abbremskraft und Startenergie folgt aus der Austrittsenergie $E_A$ die Austrittstiefe $x_o$. Diese Methode liegt der Messung von Reichweiteverteilungen aus (n,α)- und (n,p)-Spektren zugrunde (vgl. Abschnitte A2 und B).

Die Zahl der einem Energieintervall (E,E+ΔE) entsprechenden Teilchen ist (bei homogener Verteilung der Teilchen-Startorte) umgekehrt proportional der dieser Energie entsprechenden Abbremskraft, d.h. aus dem Austrittsenergie-Spektrum homogen dotierter Proben folgt - bis auf einen Faktor - die Abbremskraft als Funktion der Teilchenenergie. Eine Absolutmessung ist dann möglich, wenn zusätzlich das Spektrum einer homogen dotierten sehr dünnen Folie definierter Dicke gemessen wird: Aus dem dann erhaltenen Energieintervall ΔE der Austrittsenergien folgt bei der Foliendicke Δx das absolute Bremsvermögen zu $S(E_o) = (dE/dx)_{x=o} \approx \frac{\Delta E}{\Delta x}$ .

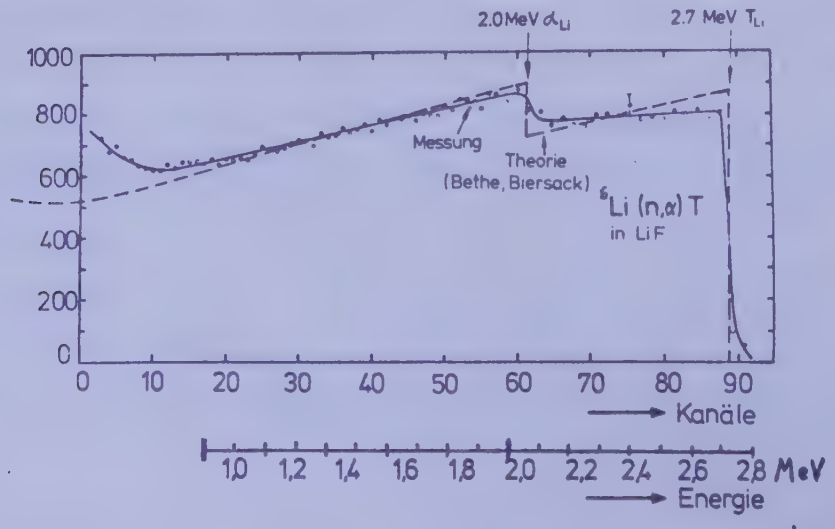
## 1.2 Messungen

Es wurde die Gültigkeit der oben beschriebenen Formeln für Tritium-Kerne in LiF und Alpha-Teilchen in Borcarbid untersucht. Hierzu wurde die in Abb. 2b gezeigte Meßanordnung benutzt. Die erhaltenen Austrittsenergiespektren, Abb. 2 a) und c), werden mit dem nach (2) bzw. (3) erwarteten verglichen. Hierbei wurde die theoretische Kurve jeweils so angepaßt, daß sie im oberen Energiebereich des Spektrums etwa derselben Gesamtzählrate entspricht. Die Steigung der experimentellen und theoretischen Kurven ist in beiden untersuchten Fällen recht unterschiedlich. Im Falle von 2,0 - 2,7 MeV-Tritium-Kernen in LiF fällt die ermittelte Abbremskraft schwächer mit wachsender Energie ab als theoretisch erwartet, im Fall von 1,0 - 1,45 MeV- Alpha-Teilchen in Borcarbid ist der Abfall der Abbremskraft mit wachsender Energie stärker als erwartet.

Tabelle 2: Abfall der Abbremskraft mit wachsender Energie $\frac{\Delta S}{\Delta E}$ für T in LiF und α-Teilchen in $B_4C$.

| System | Energiebereich [MeV] | Messung [eV/Å im 100 keV-Intervall] | Theorie |
|---|---|---|---|
| T in LiF | 2,0 ... 2,7 | $0{,}08 \pm 0{,}01$ | 0,17 |
| α in $B_4C$ | 1,0 ... 1,4 | $1{,}74 \pm 0{,}02$ | 0,84 |

Abb. 2a): Spektrum der bei der $^6Li(n,\alpha)T$-Reaktion aus LiF emittierten Reaktionspartner und Vergleich mit dem theoretisch [3], [4] erwarteten Spektrum.



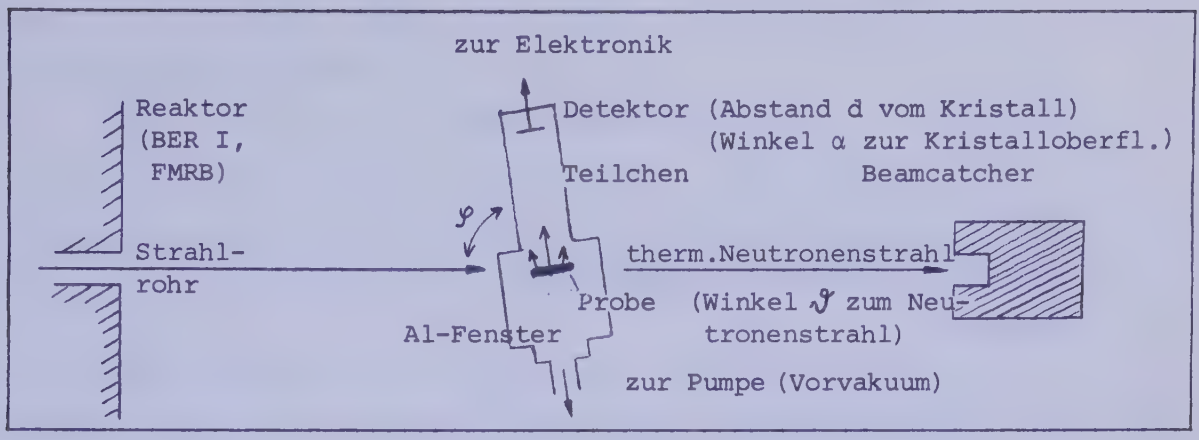



Abb. 2b) Meßanordnung zur Aufnahme der (n,α)-Spektren, Skizze.

Daten: LiF: BER I , $\phi \approx 10^3 n_{th}/cm^2 s$, $\vartheta = 30^\circ$, $\vartheta = 0^\circ$, d = 50cm, $\alpha = 0^\circ$
$B_4C$: FMRB , $\phi \approx 10^7 n_{th}/cm^2 s$, $\vartheta = 90^\circ$, $\vartheta = 0^\circ$, d = 4cm, $\alpha = 0^\circ$
Nb(Li),Ag(Li): FMRB , $\phi \approx \begin{cases} 10^7 \text{ oder} \\ 10^4 n_{th}/cm^2 s \end{cases}$, $\vartheta = 90^\circ$, $\vartheta = 45^\circ, 0^\circ$, d = 2cm, $\begin{cases} \alpha = 0^\circ \text{ oder} \\ \alpha = 45^\circ \end{cases}$

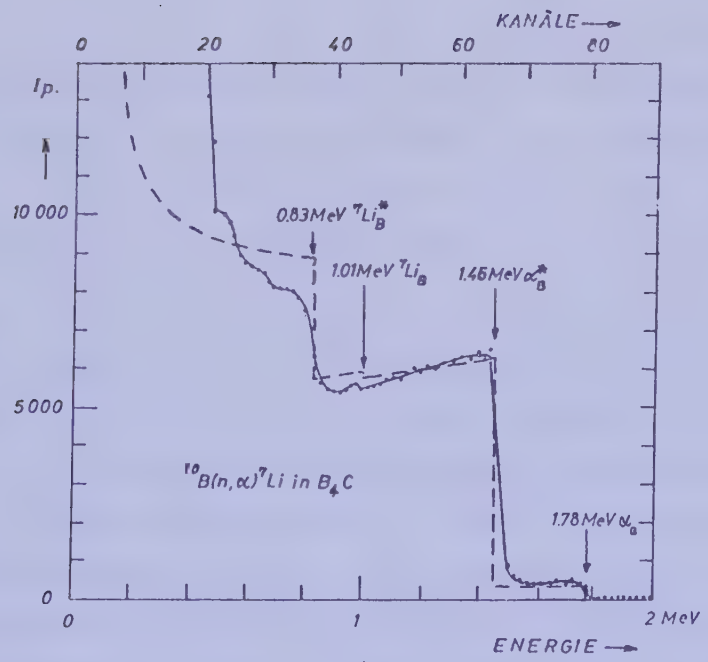



Abb. 2c): Spektrum der $^{10}B(n,\alpha)^7Li$-Reaktion in $B_4C$.
(Man erkennt deutlich die vier der obigen Reaktion zugeordneten Energiekanten.)

In beiden Fällen unterscheiden sich Experiment und Theorie um etwa einen Faktor 2 (bzw. 1/2), vgl. Tab. 2. Die experimentellen Steigungen wurden aus den gemessenen Zählraten nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate gewonnen, und es wurden an beiden Enden der betrachteten Intervalle je ca. 50 keV unberücksichtigt gelassen, um Verfälschungen der Steigung durch ungenügende Energieauflösung des Detektors (ca. 30 keV) zu vermeiden.

Das Verzweigungsverhältnis der beiden Reaktionskanäle bei $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$, in der bisherigen Literatur zu 94 : 6 angegeben [1], konnte ungefähr bestätigt werden.

Da eine homogen mit Li dotierte dünne LiF-Schicht nicht zur Verfügung stand, konnte keine Absolutmessung stattfinden. Nimmt man an, daß die vorgenommene Fittung der theoretischen Kurve an die experimentelle richtig ist, so ergibt sich bei 2,0 MeV aus der Differenzbildung zwischen oberem und unterem Wert der Energiekante die Abbremskraft für 2,0 MeV-α-Teilchen in LiF. Sie beträgt $(31 \pm 1)\,eV/\mathring{A}$ und stimmt damit bis auf ca. 2% mit dem theoretischen Wert nach (2) bzw. (3) überein.

Abschließend sei auf die Abbremsung von Alpha-Teilchen in Niob hingewiesen. Die aufgrund von Schaleneffekten mit der Ordnungszahl der Targets oszillierende Abbremskraft hat gerade für Niob ein Maximum, welches durch die Näherungsformeln (1) bis (3) nicht beschrieben wird. Deshalb ist die Abweichung zwischen theoretischer Erwartung und Meßergebnissen hier erheblich. Während durch die hier erwähnten Näherungsformeln ein stopping cross section von $73 \times 10^{-15} eVcm^2$ für 2 MeV-Alpha-Teilchen vorausgesagt wird, ist der experimentell erhaltene Wert $98 \times 10^{-15} eVcm^2$. (W.K. Lin *et al.* [49]).

Mit sinkender Energie steigt das theoretische Bremsvermögen um ca. 10% bis ca. 1,5 MeV an. Für die Auswertung von Tiefenprofilen in den folgenden Kapiteln wird mit einem konstanten Wert von $98 \times 15^{-15} eVcm^2$ im betrachteten Energieintervall gerechnet.

## 2 Reichweiten- und Strahlenschadenverteilungen

### 2.1 Grundlagen

Die Reichweite erhält man durch Integration von 1/S(E) über alle Teilchenenergien von $E_o$ bis O. Von Biersack [3] wurde eine Approximationsformel aufgestellt:

$$R \approx \frac{(m_1+m_2)^2 x^{4/5}}{5a^2 N m_1 m_2}, \quad x = \frac{a m_2 E}{Z_1 Z_2 e^2 (m_1+m_2)}, \quad \text{gültig für } x \lesssim 10 \qquad (4)$$

wobei $m_1$ bzw. $m_2$ die Massen von Projektil bzw. Bremsmedium sind und

$$a = 0{,}47 \cdot 10^{-8}\,\text{cm}/(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3} .$$

Weitere theoretische Betrachtungen zur Reichweite wurden z.B. von Schiøtt [5] und Weissmann und Sigmund [6] unternommen.

Die Reichweitenstreuung wird, falls $m_1 > m_2$ ist, in erster Näherung als gaußförmig angenommen, der die Streuung beschreibende Parameter ist nach Biersack [3] genähert:

$$\Delta R \approx \langle (x-R)^2 \rangle^{1/2} \approx \frac{(m_1 m_2)^{1/2} \cdot R}{(m_1+m_2)\cdot\sqrt{2}} \qquad (5)$$

Die Reichweitenverteilung für $m_1 \ll m_2$ ist jedoch nicht symmetrisch, sondern steigt von der Oberfläche aus langsam bis zu einem Maximalwert an, um dann in größeren Tiefen steil abzufallen. Kürzlich wurde von Weissmann und Sigmund [6] ein analytischer Ausdruck für Reichweiteverteilungen unter Berücksichtigung ihrer Asymmetrie angegeben, hier kommt auch das dritte Moment der Verteilung, $\langle (x-R)^3 \rangle$, vor. Derart berechnete Profile unterscheiden sich allerdings nicht allzu stark von den Gauß-Approximationen. Die durch das dritte Moment eingeführte Asymmetrie ist zwar bei den Profilen deutlich sichtbar, jedoch nicht allzu groß. (Dies rechtfertigt die Vernachlässigung höherer Momente der Reichweitenverteilung).

Strahlenschäden entstehen in Festkörpern durch Abgabe von Energie in Form elastischer Stöße von Projektilatomen an Targetatome, d.h. die pro Wegstrecke von einem Teilchen in einem Festkörper erfahrene nukleare Abbremskraft ist ein Maß für die Defekte längs dieses Weges. Profile der nuklearen Abbremskraft (und somit auch Strahlenschadenprofile) wurden von Weissmann und Sigmund [6] ebenfalls unter Berücksichtigung ihrer dritten Momente betrachtet. Es ergibt sich, daß die Strahlenschadenprofile einen den Reichweitenprofilen sehr ähnlichen Verlauf zeigen, die Asymmetrie der Strahlenschadenprofile ist allerdings erheblich geringer als die entsprechender Reichweitenprofile. Die Strahlenschadenprofile erreichen ihr Maximum nach einer etwas geringeren Eindringtiefe als die Reichweitenprofile. Die Berechnung der Momente von Reichweiten- und Strahlenschadenverteilung erfolgt mit Hilfe der elektronischen Abbremskraft nach der Theorie von Lindhard und Scharff [2], welche nur auf einige 10% genau stimmt. Deshalb müssen die Tiefenverteilungen zur Korrektur mit einem Skalenfaktor versehen werden, um sie mit experimentellen Ergebnissen in Übereinklang zu bringen. Dieser Faktor ist für Reichweiten- und Strahlenschadenverteilungen etwa derselbe und stets $\leq 1$.

Wenn ein durch Implantation entstandenes Tiefenprofil von beliebigen Nukliden betrachtet wird, so kann es sich entweder hierbei um ein reines Reichweitenprofil handeln, bei dem alle Projektile am Endpunkt ihres Weges verblieben sind; es kann jedoch auch der Fall eintreten, daß - bei hoher Diffusionskonstante der Implantate im Target - diese nach Abbremsung weiterdiffundieren, bis sie von Fallen eingefangen werden. Als Fallen kommen vor allem die Oberfläche und die von den einfallenden Ionen erzeugten Strahlenschäden (Leerstellen) in Betracht. Jede Falle kann eine bestimmte Anzahl von Fremdatomen binden; im Fall von He in W [27, 38, 51] werden 3 Atome pro Leerstelle energetisch bevorzugt, und es kann angenommen werden, daß sich Li ähnlich wie He verhält, da Li-Atome in Metallen ihr Valenzelektron ans Leitungsband abgeben und damit He-Konfiguration erhalten.

Das bedeutet, daß ein nach erfolgter Diffusion aufgenommenes Tiefenprofil nicht die Reichweitenverteilung, sondern die Strahlenschadenverteilung widerspiegelt. Da nur eine beschränkte Anzahl von Fallen maximal in einem Raumbezirk gebildet werden kann (es stehen Rekombination und Bildung im Gleichgewicht), ist auch die erreichbare Maximalkonzentration an Implantaten in diesem Fall beschränkt und oberhalb eines Sättigungswertes unabhängig von der Implantationsdosis. Die zusätzlich implantierten Projektilatome finden keine freien Fallen mehr vor und gehen durch Diffusion ins Innere des Targets oder durch Durchdringen der Oberfläche (bei gasförmigen Implantaten) für die Messung des Tiefenprofils verloren. Dies stimmt aber nur, wenn sich die Implantate nicht zu Ausscheidungen zusammenlagern; Ausscheidungen würden mit steigender Implantationsdosis wachsen und keine Sättigungseffekte mit der Dosis zeigen.

Bei unvollständiger Diffusion zwischen Implantation und Messung sind Übergangsprofile zu erwarten, die zwischen Reichweite- und Strahlenschadenprofilen stehen.

## 2.2 Messungen

Zur Untersuchung der Reichweiteverteilungen wurde $^{6}Li$ mit 220 keV in ein- und polykristallines Niob und polykristallines Silber bei verschiedenen Temperaturen implantiert. Tab. 3 gibt eine Übersicht über die bei der Implantation herrschenden Bedingungen.

Tabelle 3: Implantationsbedingungen für die untersuchten Proben

| Proben | Vorbereitung | Implantation von $^{6}Li$: | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | Energie [keV] | Dosis [µAmin] | Temper. [°C] | Einschuß- richtung bzgl. Targetoberfl. | Druck [Torr] |
| Ag-Blech polykr. 0,2 mm dick | gesäubert (Aceton) | 220 | ca. 100 | 20 | senkrecht | $7 \cdot 10^{-6}$ |
| Nb-Blech polykr. 0,2 mm dick | gesäubert (Aceton) | 220 | ca. 100 | 20 | senkrecht | $7 \cdot 10^{-6}$ |
| Nb-Einkristalle, 5,8mm Ø, 1mm dick | gesägt (Drahtsäge, Funkenerosion), geschliffen, elektro- o. chemisch poliert | 220 | ca. 100 | 20 | senkrecht zur Oberfl. in Nähe der <111>-Achse, aber nicht gechannelt | $7 \cdot 10^{-6}$ |
| | | 220 | ca. 10 und 2 | 700 | | |

Die Untersuchung der Reichweiteverteilungen von $^{6}Li$ erfolgte durch Messung des Energiespektrums der bei der $^{6}Li(n,\alpha)T$-Reaktion freigesetzten Reaktionsprodukte und Konversion der Energieskala in eine Tiefenskala nach Kapitel A 1. Die Probe steht im thermischen Neutronenstrahl (Fluß ca. $10^{4}$ bzw. $10^{7}$ $n/cm^{2}sec$, je nach Strahlrohr) des Reaktors FMRB der PTB, Braunschweig; die von der Probe emittierten α-Teilchen und Tritiumkerne treffen den Detektor in ca. 2 cm Entfernung (Abb.2b). Die aufgenommenen Impulse werden verstärkt und einem Vielkanal-Analysator zugeleitet.

Besonderen Wert wurde durch ein breites evakuiertes Strahlrohr, durch Anordnung des Detektors außerhalb des Neutronenstrahls und durch Vermeidung bor- und lithiumhaltiger Substanzen (z.B. kein Glas) auf einen möglichst geringen Untergrund gelegt.

Dennoch ließen sich Kontaminationen bislang nicht völlig vermeiden. Insbesondere tritt gelegentlich ein Untergrund-Peak auf bei E = 1,46 MeV (wahrscheinlich $^{17}O(n,\alpha)^{14}C$-Reaktion) der den Bereich des verwertbaren α-Spektrums bei Li-Profilen einschränkt.

Abb. 3 und 4 zeigen die gemessenen Spektren an Nb(Li)- bzw. Ag(Li)-Blechen. Diese Implantationsspektren sind deutlich von dem einer homogen mit Li dotierten Probe (Abb. 2a) verschieden. Am rechten äußeren Ende der Energiespektren erscheint der Tritiumpeak, welcher genau wie das unterhalb 2,06 MeV erscheinende α-Spektrum die Tiefenverteilung des implantierten Li widerspiegelt. Infolge der hier gewählten Einstellung des Vielkanalanalysators (16 keV/Kanal) gibt der Tritiumpeak nicht alle Einzelheiten der Tiefenverteilung wider. Der infolge der größeren Abbremskraft stärker gespreizte α-Peak hingegen (Abb. 5) zeigt neben der regulären Reichweitenverteilung noch einen Oberflächenpeak. Dieser wird auf einen Anteil des implantierten Lithiums zurückgeführt, der schon bei Zimmertemperatur beweglich ist (vgl. Teil B) und in Fallen an der Oberfläche eingefangen wird. Seine Größe hängt von Temperungsprozeduren ab. Der Ober-

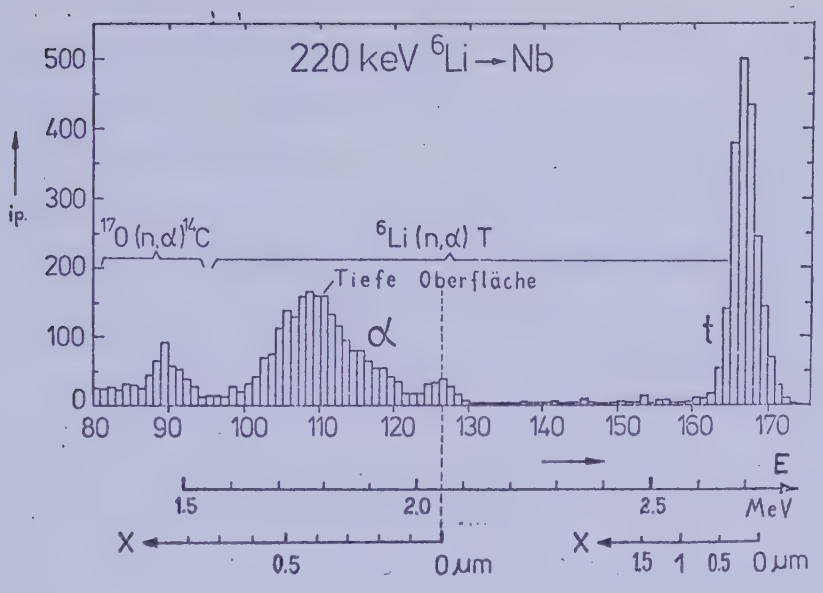



Abb. 3: Gemessenes Energiespektrum von Reaktionsprodukten der $^{6}$Li(n,α)T-Reaktion, emittiert aus Nb(Li), 30 min getempert bei 500°C, dazu Sauerstoff-Kontamination ($^{17}$O). Detektor 45° zur Oberfläche.

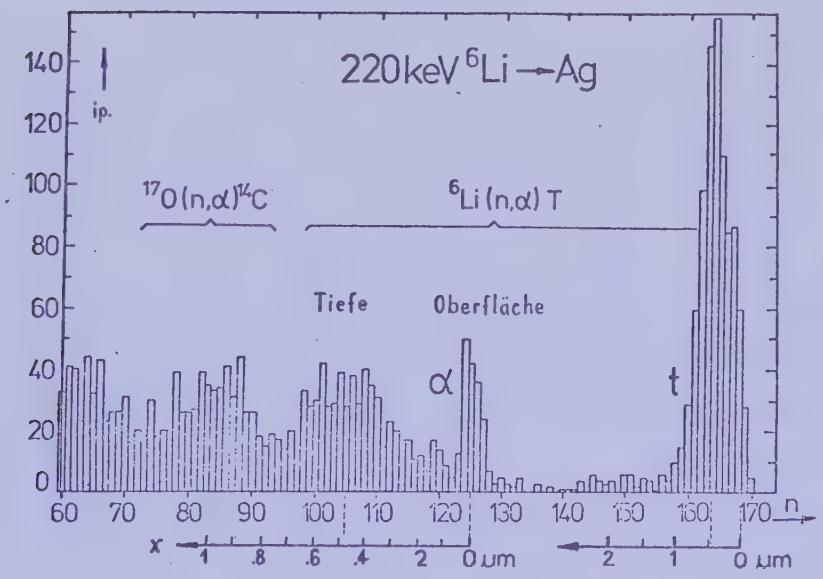



Abb. 4: Gemessenes Energiespektrum von Reaktionsprodukten der $^{6}$Li(n,α)T-Reaktion, emittiert aus Ag(Li), dazu Sauerstoff-Kontamination ($^{17}$O). Energieskala wie in Abb. 3 (beobachtet unter 45°).

flächenpeak dient - neben der Untersuchung der hochbeweglichen Li-Komponente - zur Festlegung des Nullpunkts der Tiefenskala und zur Bestimmung der Energieauflösung der Messung. (Mit einem lithiumbedampften Niobblech als Referenzprobe wurde festgestellt daß der Oberflächenpeak tatsächlich das an der Oberfläche in einer Schicht von weniger als 500 Å befindliche Li widerspiegelt. - Eine nach der Implantation in Alkohol abgewaschene Probe wies keinen Oberflächenpeak mehr auf.) Die Energieauflösung ergab sich zu 29,7 keV, die Tiefenauflösung damit zu 0,053µ.

Oberhalb des Tritiumpeaks ist die Zählrate (bis zu ca. 5 MeV) exakt Null, d.h. es existiert hier kein Untergrund. Daraus wird geschlossen, daß ein Teil des langen "Schwanzes" des Tritiumpeaks zu kleinen Energien hin (entsprechend einer Tiefe bis zu 4µ) echt ist und, genau wie der Oberflächenpeak, der beweglichen Li-Komponente zugeschrieben werden muß.

Nach Konversion der Energieskala der Spektren in eine Tiefenskala und Subtraktion des Oberflächenpeaks wurden aus dem α-Peak die die Tiefenverteilung des Li bestimmenden Größen entnommen. Sie sind in Tab. 4 zusammengestellt und mit der Theorie verglichen.

Die Proben wurden teils unter 45°, teils senkrecht zur Oberfläche beobachtet. Eine schräge Beobachtungsrichtung wurde gewählt, um die Auflösung durch Spreizen der Tiefenskala zu verbessern. Jedoch gehen hier stark kleine Fehler im Einstellwinkel und die Strahldivergenz zwischen Kristall und Detektor ein. Es zeigte sich, daß das Tiefenprofil bei Beobachtung unter 90° zur Oberfläche schärfer ausgeprägt war (Abb. 5). Zwischen ein- und polykristallinen Proben besteht innerhalb der Fehlergrenzen kein Unterschied.

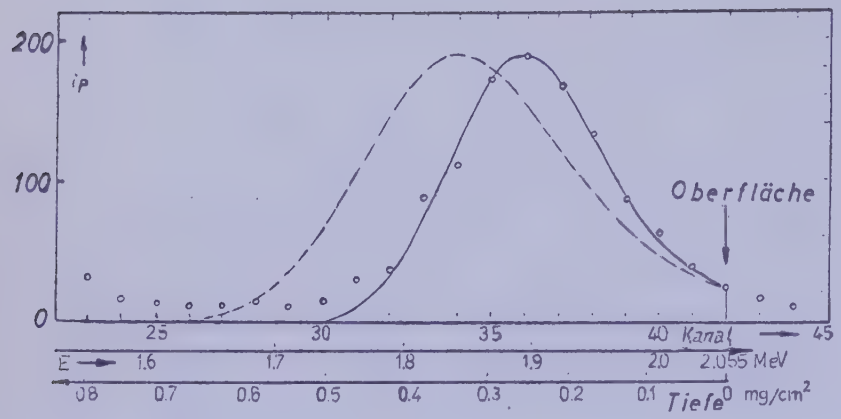
Bei den beiden bei 700°C implantierten Proben ergab sich trotz einer um ca. eine Größenordnung verschiedenen Implantationsdosis fast dieselbe Konzentration von Li-Atomen im ausgemessenen Tiefenprofil. Dies weist, genauso wie die gute Übereinstimmung der Profile mit dem theoretisch berechneten Strahlenschadenprofil[+)], darauf hin, daß die Li-Atome hier nach der

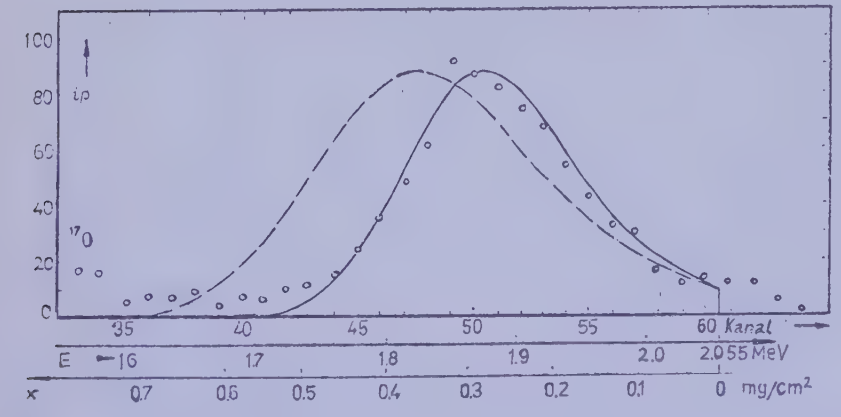
[+)] Theoretische Profile nach Weissmann und Sigmund, mit einem Skalenfaktor 0,77 in der Tiefe für die Reichweite und alle höheren Momente versehen.

Implantation nicht zur Ruhe kamen, sondern durch das Target diffundierten und alle freien Fallen besetzten. Da bei der hohen Implantationstemperatur viele Strahlenschäden sich durch Rekombination schnell erholen konnten, war das Fallen-Angebot nicht sehr groß, so daß nur einige $10^{14}$ Li-Atome (entsprechend $10^{-2...-3}$ aller Li-Atome) einen festen Platz in Oberflächennähe einnehmen konnten und durch die Messung nachgewiesen wurden. Da die nachgewiesene Li-Menge dosisunabhängig war, können Ausscheidungen unter diesen Bedingungen ausgeschlossen werden. Auch ist eine weitere Konsequenz, daß das hier gemessene Tiefenprofil schon bei Dosen unterhalb von 2µAmin stationär sein muß.

Im Fall der bei Zimmertemperatur implantierten Proben werden alle implantierten Li-Atome in der Tiefenverteilung wiedergefunden. Der Einfluß von Diffusion ist hier vernachlässigbar, erst nach einigen Wochen findet man einige Prozent der Menge an der Oberfläche bzw. in tieferen Schichten. Das Profil läßt sich gut durch das theoretische Reichweitenprofil beschreiben, wenn auch hier ein Skalenfaktor 0,77 für die Reichweite und aller höheren Momente berücksichtigt wird, Abb. 5.

Im Fall der Ag(Li)-Proben beträgt die nachgewiesene Menge im Tiefenprofil ebenfalls nur einen Bruchteil der implantierten Li-Atome (ca. 0,2%). Während der bei den Nb(Li)-Proben nachgewiesene Teil der Li-Atome in Fallen hoher Bindungsenergie sitzt, sind die in Ag(Li) nachgewiesenen Atome nur sehr locker gebunden. Hier beeinflußt die Zimmertemperaturdiffusion das Tiefenprofil (Abb. 6, Tab. 4) so stark, daß die Angabe höherer Momente des Profils nicht mehr sinnvoll erscheint.



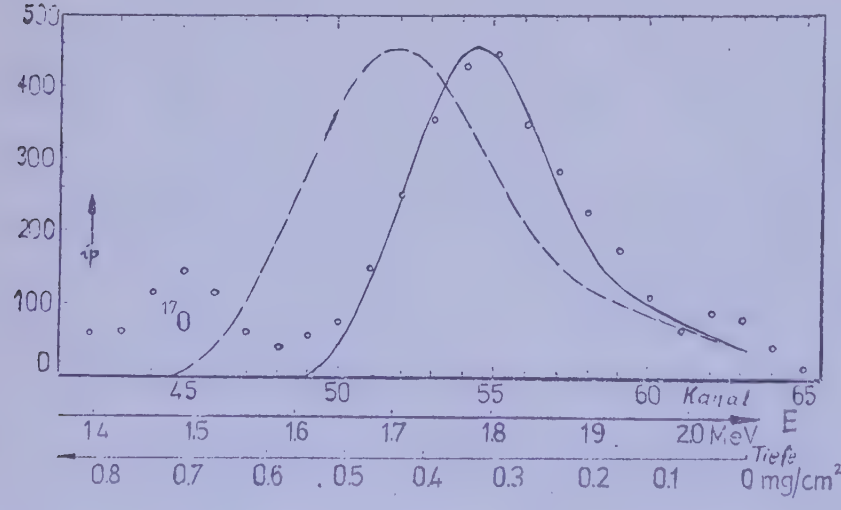




Abb. 5:

Tiefenprofile von Lithium in Niob

a) Implantation von 200 keV $^{6}Li$ in Niob-Einkristall bei 700°C, 10 µAmin $^{6}Li^{+}$. Beobachtet unter 0°. Dargestellt ist das α-Spektrum von $^{6}Li(n,\alpha)T$-Reaktionen. Das Tiefenprofil ist ein Strahlenschadenprofil. Vergleich mit Theorie: gestrichelt: Kurve ohne, durchgezogen: mit Skalenfaktor 0,77 in der Tiefe. Theorie nach Weissmann und Sigmund.

b) Implantation von 220 keV $^{6}Li$ in Niob-Einkristall bei 700°C, 2 µAmin $^{6}Li^{+}$. Beobachtet unter 0°. Dargestellt ist das α-Spektrum von $^{6}Li(n,\alpha)$-T-Reaktionen. Das Tiefenprofil ist ein Strahlenschaden-Profil. Vergleich mit Theorie wie oben.

c) Implantation von 220 keV $^{6}Li$ in Niob-Einkristall bei Zimmertemperatur, 100 µAmin $^{6}Li^{+}$. Beobachtet unter 40°. Dargestellt ist das α-Spektrum von $^{6}Li(n,\alpha$ Reaktionen. Das Tiefenprof ist ein Reichweitenprofil. Vergleich mit Theorie nach Weissmann und Sigmund: gestrichelt: Kurve ohne, durchgezogen: mit Skalenfaktor 0,77 in der Tiefe. Der Skalenfaktor ist somit bei Reichweite- und Strahlenschadenverteilungen derselbe.

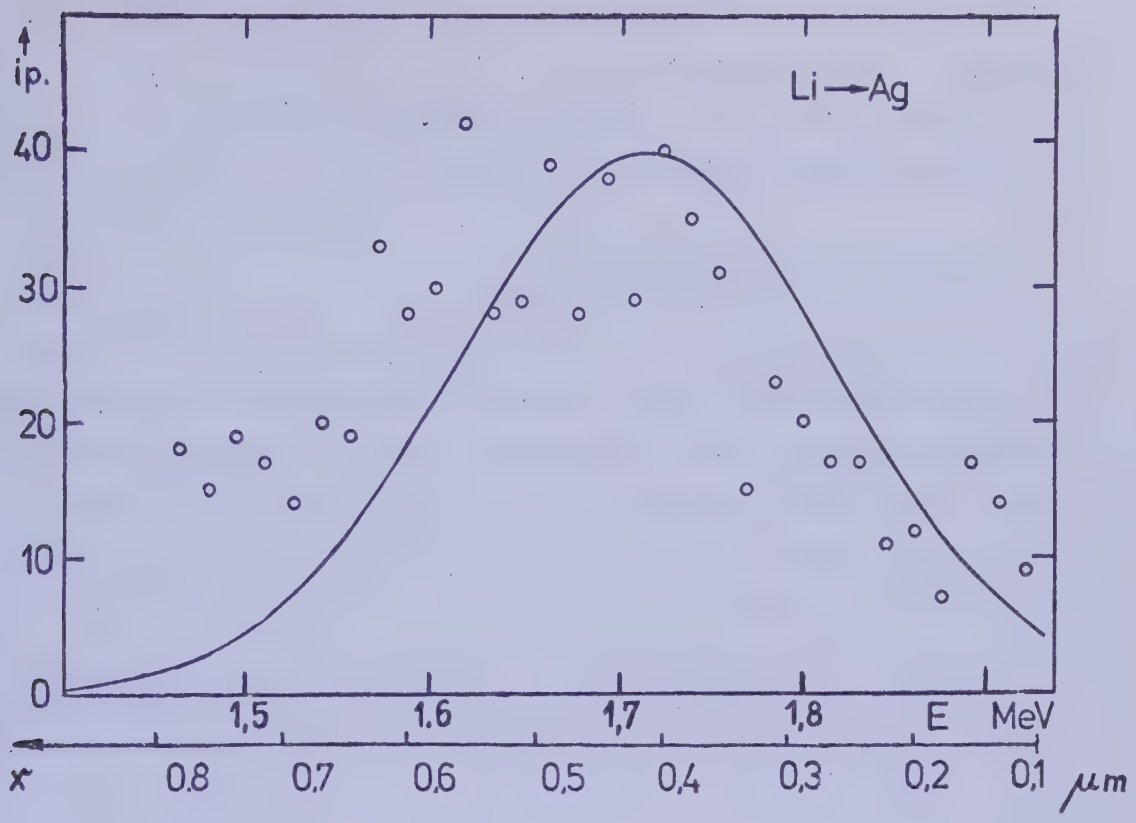



Abb. 6: Reichweiteprofil von Li in Ag, gewonnen aus dem α-Spektrum der Reaktion $^{6}Li(n,\alpha)T$ (ohne Oberflächenpeak).

durchgezogene Linie: Theorie [3].

Tabelle 4: Reichweitenverteilung von 220 keV $^{6}Li$ in Nb und Ag

| | Niob-Einkristalle | | Silber-Folie | |
|---|---|---|---|---|
| | Theorie | Experiment | Theorie | Experiment |
| wahrscheinlichste Reicheweite $\hat{x}$ | 0.43µ | 0.48µ | | |
| mittlere proj. Reichweite $\bar{x}$ | 0.38µ | 0.36µ | 0.42µ | 0.43µ |
| Standard-Abweichung $\langle(x-\bar{x})^2\rangle^{1/2}$ | 0.15µ | 0.15µ | 0.20µ | 0.20µ |
| Schiefe $\langle(x-\bar{x})^3\rangle^{1/3}$ | -0.16µ | -0.11µ | | |

Die theoretischen Werte wurden nach Biersack [50], Weissmann und Sigmund [6] von Biersack [3] berechnet. Bei Niob wurde ein Faktor 0.77 in der Tiefenskala berücksichtigt, bei Silber nicht. Die Tiefenprofile von Li in Ag sind bereits bei Zimmertemperatur stark durch Diffusion beeinflußt. Für die berechneten Werte wurde eine Niobdichte von 8,55 g $cm^{-3}$ und ein Abbremswirkungsquerschnitt von 98 x $10^{-15}$ eV $cm^2$ angenommen.

## Teil B: Diffusion

### 1 Theoretischer Teil

### 1.1 Atomare Diffusionstheorie

Ein im Kristallgitter mit der Frequenz $\nu$ schwingendes Atom kann seinen Ort verlassen, wenn die Schwingungsenergie die Höhe der Potentialschwelle überschreitet, in der das Atom bisher eingefangen war. Makroskopisch machen sich die Sprünge der Atome in einem Festkörper als eine zeitliche Änderung ihrer Konzentrationsverteilung bemerkbar. Diese Erscheinung heißt Diffusion.

Ein Maß für die Diffusion ist die Diffusionskonstante D. Sie ist definiert als

$$D = \nu^* \cdot \frac{a^2}{6} \quad ,$$

wobei a der Abstand zweier benachbarter Potentialmulden des Gitters ist. Die Zahl der Sprünge pro Zeiteinheit, $\nu^*$, ist abhängig vom Diffusionsmechanismus:

Befindet sich ein Atom auf einem Zwischengitterplatz, so ist $\nu^*$ gegeben durch die Wahrscheinlichkeit, daß das Atom die Schwellenergie $E_m$ hat: $\exp(-E_m/kT)$ (Boltzmann-Verteilung, $E_m$ = "migration energy", k = Boltzmann-Konstante, T = absolute Temperatur), multipliziert mit der Schwingungs-Frequenz $\nu$ des Atoms:

$$D = \frac{a^2}{6} \nu \exp(-E_m/kT) = D_o \exp(-E_m/kT). \qquad (6)$$

Befindet sich das betrachtete Atom auf einem Gitterplatz, so kann es sich im Gitter nur weiterbewegen, wenn sich an einem der $\xi$ Nachbarplätze ($\xi$= Koordinationszahl; $\xi$ = 12 für kub.-flz. und 8 für kub.-raumzentr. Gitter) eine Leerstelle befindet. Die in einem Kristall pro sec erfolgende Zahl der Sprünge von Atomen in benachbarte Leerstellen ist gegeben durch das Produkt aus der Leerstellenkonzentration $c_{leerst.}$, der Koordinations-

zahl, der Debeye-Frequenz $\nu$ und der Wahrscheinlichkeit, daß das Atom die für diese Leerstellendiffusion benötigte Energie $E_k$ gerade besitzt:

$$\nu^* = c_{Leerst.} \cdot \xi \cdot \nu \cdot \exp(-E_k/kT).$$

Leerstellen können durch Schottky- oder Frenkel-Defekte entstehen. Normalerweise treten Schottky-Defekte auf (einzelne Atome wandern an die Oberfläche und liefern Beiträge zur thermischen Ausdehnung), Frenkel-Defekte sind meist eine Folge von Strahlenschäden (Atome gehen auf Zwischengitterplätze). Die Leerstellenkonzentration der Schottky-Defekte $c_{Leerst.}$ ist exponentiell von der Temperatur abhängig ($c_{leer} = \exp(-E_v/kT)$), so daß für die Diffusionskonstante hier gilt:

$$D = D_o \exp(-\Delta E/kT)$$

mit

$$D_o = a^2 \cdot \xi \cdot \nu/6 \qquad (7)$$

und

$\Delta E$= Aktivierungsenergie = $E_v + E_k$.

In einem strahlengeschädigten Kristall sind viele freie Leerstellen vorhanden, die für Fremdatome als Fallen wirken, auch wenn diese ohne Anwesenheit von Fallen auf Zwischengitterplätzen säßen. Zur Entfernung der in Fallen gebundenen Atome muß Arbeit aufgewendet werden, was durch Temperaturerhöhung erreicht werden kann. Nach [7] gilt für die Wahrscheinlichkeit für das Einfangen in bzw. das Freisetzen aus einer Falle, A bzw. B:

$$A \approx 4 \pi R D N \quad , \quad B \approx \nu_F \exp(-\Delta H/kT), \qquad (8)$$

R = effektiver Fallenradius,
N = Fallenkonzentration,
$\nu_F$= Frequenz des Atoms in der Falle,
$\Delta H$= Enthalpieänderung bei Fallenfreisetzung.

Die Diffusionskonstante für den bei Anwesenheit von Fallen vorliegenden Mechanismus (Freisetzung aus Fallen-Wanderung-Einfangen in Fallen-Freisetzen-Wandern-Einfangen-...; engl.: "trapping-detrapping"), $D_{eff}$, setzt sich nach [7] folgendermaßen aus A, B und der Diffusionskonstante ohne Anwesenheit von Fallen, D , zusammen:

$$D_{eff} = \frac{D}{1 + A/B} \quad . \tag{9}$$

Verunreinigungen im Kristall oder Gitterfehler schaffen Spannungsfelder, welche die die Diffusion bestimmenden Schwellenenergien erniedrigen, so daß die Diffusionskonstante steigt. Deshalb sind die stark verunreinigten und ungeordneten Korngrenzen polykristalliner Materialien Zonen bevorzugter Diffusion. Die hier gemessenen Diffusionskonstanten unterscheiden sich häufig von der Diffusionskonstante reiner Einkristalle (bzw. der Diffusion innerhalb der Kristallite polykristalliner Materialien) um viele Größenordnungen [8].

## 1.2 Diffusionsprofile

Aus der Transporttheorie der Diffusion folgt das 2. Fick-sche Gesetz:

$$\dot{c} = D \cdot \nabla^2 c \quad . \tag{10}$$

Zusammen mit der Randbedingung:

$c(z = 0) = 0$ für Gase in Festkörpern bzw.

$\nabla c(z = 0) = 0$ für feste Implantate in Festkörpern

(z = Tiefe im Festkörper, von der Oberfläche aus gemessen)

und dem Ausgangsprofil

$c(z,t = 0)$

läßt sich diese Differentialgleichung für beliebige Fälle auswerten. In Tabelle 5 geschieht dies für das Ausgangsprofil: Gaußverteilung für beide Randbedingungen.

Tabelle 5: Diffusionsprofile

| Randbedingung | Konzentrations-Profil | Gesamtzahl | Abnahme der Gesamtzahl | Profilhöhe |
|---|---|---|---|---|
| Dotierung; $c, \nabla c(z = 0) =$ | $c(z,t) =$ | $N(t) = \int_0^\infty c(z,t)\,dz =$ | $\frac{dN(t)}{dt} =$ | $c_{max}(t) =$ |
| Fest $\nabla c(z = 0) = 0$ | $\frac{a}{2\sqrt{\pi\Lambda}} \left(e^{-(z-R)^2/4\Lambda} + e^{-(z+R)^2/4\Lambda}\right)$ | $a$ | $0$ | $\frac{a}{2\sqrt{\pi\Lambda}} \left(1+e^{-R^2/2\Lambda}\right)$ |
| Gas $c(z = 0) = 0$ | $\frac{a}{2\sqrt{\pi\Lambda}} \left(e^{-(z-R)^2/4\Lambda} - e^{-(z+R)^2/4\Lambda}\right)$ | $a \cdot \mathrm{erf}\left(\frac{R}{2\Lambda}\right)$ | $-a\left(1 - \mathrm{erf}\frac{R}{2\Lambda}\right)$ | $\frac{a}{2\sqrt{\pi\Lambda}} \left(1-e^{-R^2/2\Lambda}\right)$ |

wobei $\Lambda =$

$2Dt + \frac{(1/e - \text{Breite}_o)^2}{4} = 2Dt + \frac{(HWB_o)^2}{4 \cdot \ln 2}$ für Ausgangsprofile $\frac{a}{\sqrt{2\pi\Delta R^2}} \left(e^{-(z-R)^2/2\Delta R^2} \pm e^{-(z+R)^2/2\Delta R^2}\right)$

($\frac{1}{e}$ -Breite$_o$ und $HWB_o$ bezogen auf Ausgangsprofil ; $\Delta R = \frac{1}{e} - \text{Breite}_o/2$)

$\sum_i 2 D_i \Delta t_i + \frac{HWB_o^2}{4 \cdot \ln 2}$ für mehrmalige Ausheizprozesse in Zeitintervallen $\Delta t_i$ mit verschiedenen $D_i$.

Die Randbedingung für Gase in Festkörpern läßt sich auch auf fallenbesetzte Oberflächen oder auf nichtlösliche Implantate anwenden, da eine Rückdiffusion der Fremdatome ins Innere des Festkörpers verhindert wird. Auf der Oberfläche baut sich dann ein neues Konzentrationsmaximum auf, welches der Atomanzahl entspricht, die bei gasförmigen Fremdatomen ins Freie gehen würde. (Fallen sind in Kristalloberflächen einerseits durch Adsorptionsschichten, z.B. Stickstoff oder Sauerstoff, andererseits durch gestörten Potentialverlauf besonders häufig).

## 2 Experimente zur Diffusion

### 2.1 Experimentelle Grundlagen

Für die Diffusionsversuche wurden die zur Untersuchung der Reichweitenprofile hergestellten Proben, Tab. 3, und die dort benutzte Aparatur, Abb. 2b, verwendet. Nach jeder Spektrenmessung wird die Probe bei einer vorgegebenen Temperatur eine bestimmte Zeit ausgeheizt, woran sich die nächste Spektrenmessung anschließt. Es muß auf gute Reproduzierbarkeit des Probenortes geachtet werden, um Schwankungen des Neutronenflusses durch veränderte Lage zu vermeiden. Der für das Heizen bestimmte Ofen muß wegen der exponentiellen Temperaturabhängigkeit der Diffusionskonstante gut temperaturstabilisiert sein; es stand hier ein Ofen zur Verfügung, dessen Temperatur sich nach dem Einschwingvorgang auf $\pm$ 0,5% genau halten ließ. Leider war die maximal erreichbare Temperatur des Ofens nur knapp $1000^{o}$. Während des Ausheizvorgangs mußte Argon als Schutzgas verwendet werden, da eine bei Luft ausgeheizte Niobprobe bei höheren Temperaturen starke Oxidationserscheinungen aufwies. Das Argon stand unter einem Druck von $\leq$0,1 Torr (Vorvakuum).

## 2.2 Ausheizexperimente mit Nb(Li)

Zwischen dem Zeitpunkt der Probenpräparation und dem der ersten Spektrenmessung vergingen durchschnittlich etwa 3 Wochen. Die erste Messung diente vor allem der Gewinnung der Reichweitenverteilung, außerdem stellt sie das Bezugsprofil für alle folgenden Diffusionsmessungen dar. Die Proben wurden schrittweise von ca. 500°C bis auf 993°C aufgeheizt, die Heizdauer betrug durchschnittlich 1/2 Std. Schon bei der ersten Messung (Abb. 5) trat außer dem erwarteten Konzentrationsprofil ein Oberflächenpeak auf, der bei niedriger Implantationstemperatur groß, bei hoher Temperatur klein war. Der Oberflächenpeak von bei Zimmertemperatur implantierten Proben vergrößerte sich beim Ausheizen bis 750°C stetig, um bei noch höheren Temperaturen durch Verdampfung völlig zu verschwinden (Abb. 7a). Das Tiefenprofil behielt seine Form währenddessen bei und verminderte sich nur um den an den Oberflächenpeak abgegebenen Betrag, also um maximal etwa 15%.

Ein ähnliches Verhalten wurde von Smith et al. [9] für Nikkel in Kupfer und Zink bei Zimmertemperatur und 77°K und von Hirvonen et al. [10] für Cr in Au bei 250 - 450°C beobachtet; Blewer [11] beobachtete diese Verhalten für Helium in Kupfer bei Temperaturen zwischen 225°C und 400°C, und auch Kornelsen [12] berichtete von anomal starker Diffusion von He in verschiedenen Targets bei Zimmertemperatur.

Dieses Verhalten ist wahrscheinlich auf Atome zurückzuführen, die während der Implantation auf Zwischengitterplätzen oder in Fallen mit besonders niedriger Bindungsenergie zur Ruhe kommen und infolge dessen schon bei Zimmertemperatur beweglich sind.

Diese anomale Diffusion ist wahrscheinlich eine Zwischengitterdiffusion. Die zur Oberfläche diffundierenden Atome werden dort in Fallen mit offensichtlich höherer Bindungsenergie wieder eingefangen. Diese Erscheinung ist höchst bedeutsam für elektronische Anwendungen und vor allem deshalb zur Zeit Gegenstand vieler Untersuchungen.

Bei dem mehrere Stunden lang bei 700°C mit Li-Ionen beschossenen Kristall ist wahrscheinlich ein Teil des zur Oberfläche gelangten interstitiellen Anteils bereits verdampft, weiterhin sind wahrscheinlich einige Oberflächenatome durch den Ionenbeschuß wieder ins Innere des Kristalls getrieben worden. Während der bei Zimmertemperatur erfolgten Implantation sind im Oberflächenpeak maximal etwa 15% aller Li-Atome vorhanden, bei der 700° Implantation nur <5%.

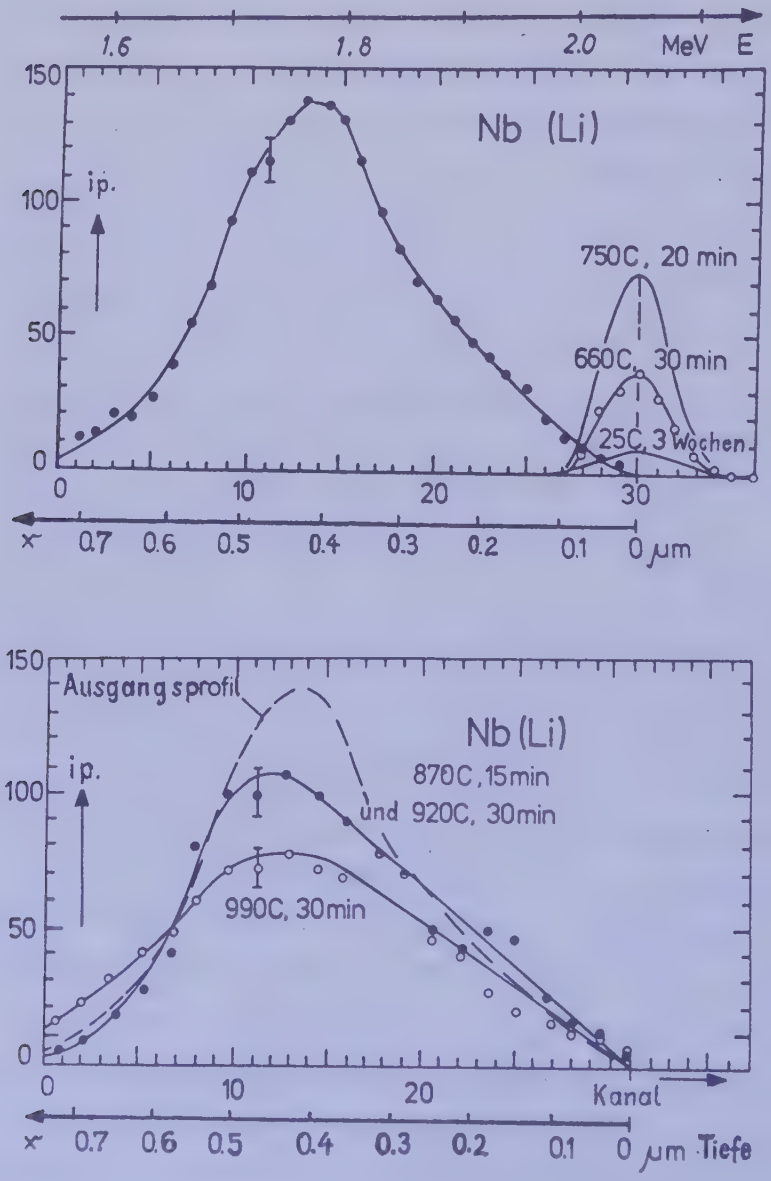



Abb. 7: Konzentrationsprofile von Li in Niob (implantiert bei Zimmertemperatur) nach Ausheizen auf verschiedene Temperaturen. a) Unterhalb von 750°C ändert sich das Ausgangsprofil nicht, aber der Oberflächenpeak steigt an. b) Oberhalb von 750°C ist der Oberflächenpeak verschwunden, das Implantationsprofil verbreitert sich durch Diffusion (Kurven geglättet).

Beim Ausheizen auf Temperaturen über 750°C verbreitert sich das Implantationsprofil unter Abnahme seiner Amplitude, Abb. 7b. Die beobachteten Profiländerungen stimmen mit berechneten Diffusionsprofilen mit der Randbedingung $c(0) = 0$ (d.h. Li verhält sich bei diesen hohen Temperaturen wie ein gasförmiges Implantat) überein. Man erhält aus diesen Messungen eine Diffusionskonstante von $(6\pm2)\cdot10^{-14}\,cm^2sec^{-1}$ für 990°C und eine Aktivierungsenergie von $\Delta E = (2{,}1 \pm 0{,}4)$eV. Folienmessungen und Einkristallmessungen lieferten dasselbe Ergebnis. Dies war zu erwarten, da die mittlere Korngröße des verwendeten polykristallinen Niob bei 21 µ lag (Abb. 8a: Schliffbild einer polykristallinen Niob-Probe, Abb. 8b: daraus entnommene Korngrößenverteilung) und daher groß gegenüber der mittleren Reichweite der Lithiumionen ist.

Der Zimmertemperaturdiffusion entspricht eine Aktivierungsenergie von ca. 0,5 ... 0,8 eV, welches gut mit den Aktivierungsenergien von auf Zwischengitterplätzen diffundierendem Na,K [13] und He [14] in Niob übereinstimmt. Als obere Grenze der Diffusionskonstante D für Zimmertemperatur ergibt sich nach $x_D \approx \sqrt{2Dt}$ ($x_D$ = mittlere Diffusionsweglänge, hier $\lesssim R$; t = Diffusionsdauer, hier ~ 3 Wochen): $D_{25°C} < 7 \cdot 10^{-16}\,cm^2s^{-1}$.

Die bei höheren Temperaturen gefundene Aktivierungsenergie, 2,1 eV, bedeutet, daß die Diffusion durch trapping-detrapping-Prozesse gemäß Gl. (9) verlangsamt wird. Eine andere Deutungsmöglichkeit wäre die, daß Li-Atome sich im Niob zu kleinen Ausscheidungen zusammenballen. Die beobachtete Diffusion des Li wäre dann das makroskopische Bild der Wanderung von kleinen, ca. $(20 \pm 10)$ Å großen Bläschen aus Li [15]. Eine Entscheidung zwischen diesen beiden Deutungen ist dadurch gegeben, daß bei Hochtemperaturimplantation die Maximalkonzentration des nachgewiesenen Li-Anteils unabhängig von der Implantationsdosis ist. Dies spricht gegen die Existenz von Ausscheidungen, da jene mit steigender Dosis wachsen und damit die Maximalkonzentration erhöhen würden.

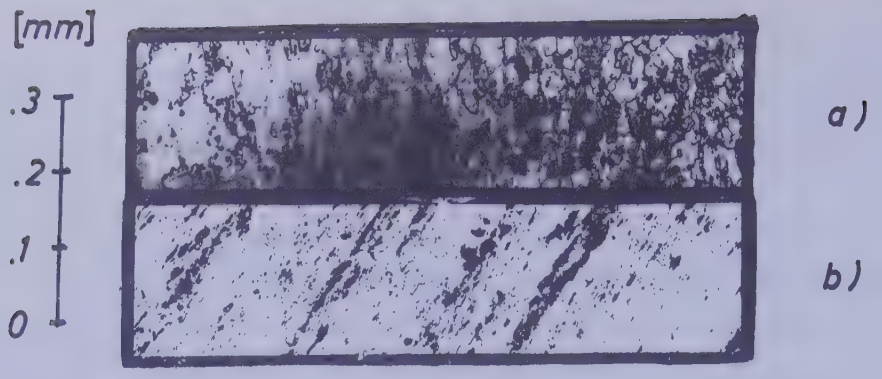



Abb. 8a: Kornstrukturen der untersuchten Niob-Probe.

a) Probe bei Zimmertemperatur,
b) Probe nach Ausheizen auf 992°C.

(Probe erst mit 0,05 µm $Al_2O_3$ poliert, dann mit $HF+HNO_3$, 1:1 geätzt)

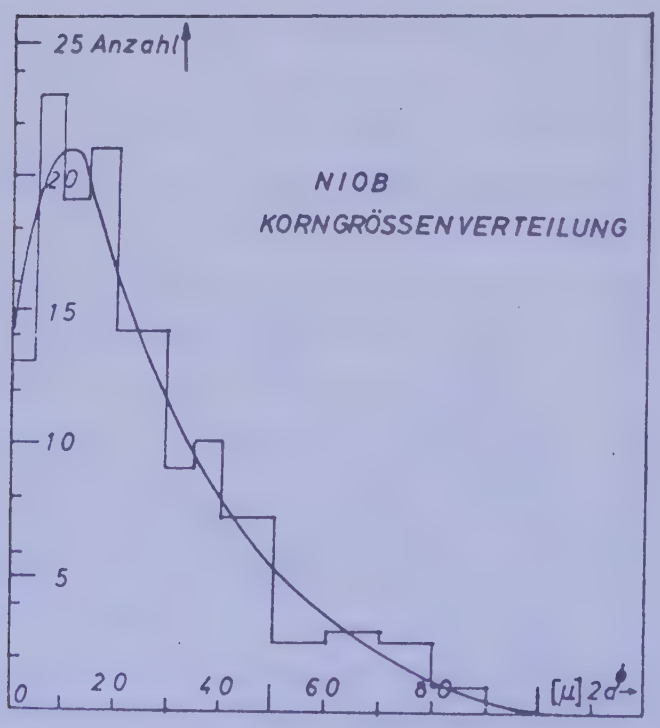



Abb. 8b: Größenverteilung der Kristallite beim Niob-Blech, gewonnen aus Abb. 8a.

Tabelle 6 zeigt einen zusammenfassenden Vergleich der Messungen am System Nb(Li) mit anderen Messungen an ähnlichen Systemen. Die hier gemessene Diffusionskonstante für Li in Nb stimmt bei 1000°C zwar innerhalb einiger Zehnerpotenzen mit der von Na und K in Nb überein, nicht jedoch die dazugehörigen Aktivierungsenergien. Umgekehrt liegen die Aktivierungsenergien von Li in Nb für Korngrenzendiffusion und trapping-detrapping-Diffusion zwar in gleicher Größenordnung, nicht jedoch die entsprechenden Diffusionskonstanten. Sie unterscheiden sich bei 1000°C um den Faktor $5 \cdot 10^7$ [16].

Tabelle 6: Übersicht über die Ergebnisse von Diffusionsversuchen an Nb(Li) und Ag(Li) sowie verwandten Systemen.

| System | Difusions-Mechanismus | D(T°C) [$cm^2 s^{-1}$] | $D_o$ [$cm^2 s^{-1}$] | Q [eV] | Referenz |
|---|---|---|---|---|---|
| Nb($^6$Li) polykr. einkr. | Zwischengitterd. | 25°C: $<7 \cdot 10^{-16}$ | | 0,65±0,15 | EMO |
| Nb($^4$He) polykr. | " | 1000°C: $\sim 10^{-17}$ | $3,7 \cdot 10^{-10}$ | 0,51 | [14] E |
| Nb($^{24}$Na) polykr. | " | 1000°C: $4,5 \cdot 10^{-12}$ | $1,2 \cdot 10^{-19}$ | 0,44 | [13] E |
| Nb($^{42}$K) polykr. | " | 1000°C: $1,3 \cdot 10^{-12}$ | $3,1 \cdot 10^{-10}$ | 0,59 | [13] E |
| W($^4$He) | " | | | 0,24 | [18] T |
| Cu($^4$He) | " | | | 0,45 | [18] T |
| Ag($^6$Li) polykr. | " | 25°C: $<3 \cdot 10^{-16}$ | | 0,7±0,3 | EMO |
| | | 400°C: $10^{-8\pm0.5}$ | $10^{-(2\pm1)}$ | 0,6±0,3 | EMT |
| Nb($^6$Li) einkr., polykr. | trapping-detrapping-Diffusion | 993°C: $(5,6\pm2) \cdot 10^{-14}$ | $4,6 \cdot 10^{-4}$ | 2,1±0,4 | EMT |
| Nb($^6$Li) polykr. | Korngrenzendiff. | 1000°C: $1 \cdot 10^{-6}$ | $3,2 \cdot 10^{+5}$ | 2,95 | [16] E |
| W($^4$He) einkr. | Leerstellendiff. | | | 4,69 | [17] T |
| | | | | 4,0 | [19] E |
| Mo($^4$He) | " | | | 4,19 | [18] T |
| Cu($^4$He) | " | | | ca.1 | [18] T |

EMO = Eigene Messung, Auswertung des Oberflächenpeaks
EMT = Eigene Messung, Auswertung des Tiefenprofiles
E = Experimente
T = Berechnung

## 2.3 Ausheizexperimente mit Ag(Li)

Um zu sehen, ob das bei den Nb(Li)-Proben gefundene Verhalten in ähnlicher Weise auch bei anderen Systemen auftritt, wurden zum Vergleich Ag(Li)-Proben hergestellt (Tab. 3) und untersucht. Von Ag(Li) gibt es bislang noch keine Literaturangaben für die Diffusion.

Abb. 9 zeigt ein Beispiel für die Li-Profile in Ag.

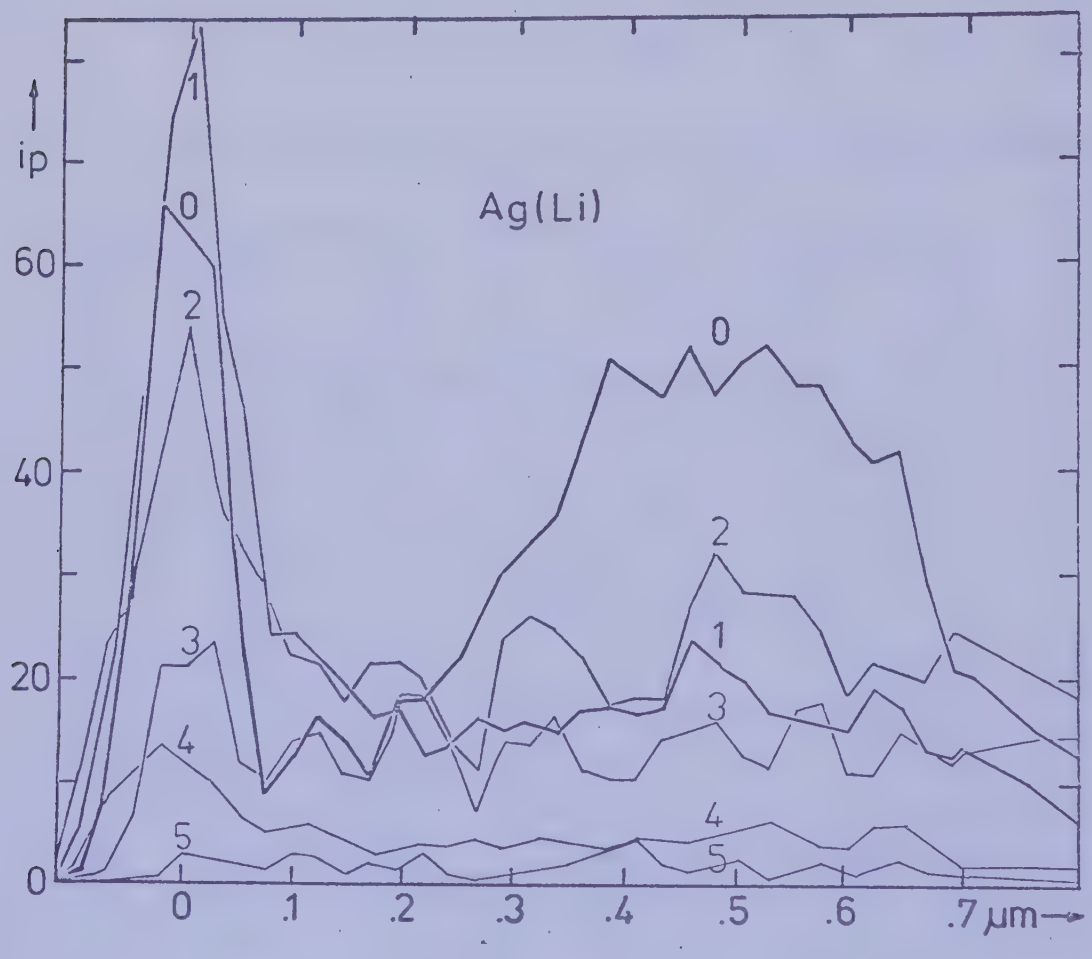



Abb. 9: Diffusionsexperimente an Ag(Li). Erklärung der Nummern:

Nr. 0: Ausgangsprofil, 2 Wochen bei 25°C,
" 1: 1 Std., 300°C
" 2: 1 Std., 400°C
" 3: 1 Std., 400°C
" 4: 1 Std., 400°C
" 5: 1 Std., 400°C.

Das anschließend bei 750°C, 2min entstandene Profil fällt fast mit der Nullinie in diesem Maßstab zusammen, ist deshalb nicht gezeichnet.

Alle Profile sind auf das Ausgangsprofil normiert (Nr. 0).

Bei den Ag(Li)-Proben trat nach kurzer Lagerung bei Zimmertemperatur genauso wie bei den Nb(Li)-Proben ein Oberflächenpeak auf. Dieser Peak vergrößerte sich bis zu Ausheiztemperaturen von 300°C. Mit max. etwa 40% ist er wesentlich stärker ausgeprägt als bei Nb(Li). Das bedeutet, daß bei Bestrahlung des Ag weniger Fallen mit hohen Bindungsenergien entstanden als bei Nb. Als obere Grenze dieser (wahrscheinlich wie bei Nb(Li) interstitiell diffundierenden) Li-Komponente erhält man $D_{25C} < 3 \cdot 10^{-16} cm^2 s^{-1}$.

Ab 400°C sinkt der Oberflächenpeak. Da bei dieser relativ geringen Temperatur der Dampfdruck des Li an der Oberfläche noch nicht erheblich sein dürfte (vgl. Nb-Versuch), ist hier eine Freisetzung des oberflächlich gebundenen Li aus seinen Fallen anzunehmen (evtl. Einsetzen von Oberflächendiffusion). Aus der Abnahme des Oberflächenpeaks läßt sich die Freisetzungsenthalpie des Li aus den Fallen an der Oberfläche zu $(0,7 \pm 0,3)$eV bestimmen, der Frequenzfaktor liegt bei $D_o = 30\ cm^2 s^{-1} \pm$ Zehnerpotenz; die Freisetzungswahrscheinlichkeit ist bei 400°C: $9 \cdot 10^{-5}\ sec^{-1}$. Bei 750°C ist der Oberflächenpeak schon nach 2 min Heizen fast vollständig verschwunden, was - analog zu den Niob-Versuchen - auf eine Verdampfung des Li hindeutet. (Deshalb wurde dieser Meßwert zur Bestimmung obiger Größen nicht herangezogen.) Das Konzentrationsprofil des Li im Innern der Probe sinkt bei 300°C auf 60% des Ausgangsprofils unter Beibehaltung der Breite (Wegdiffusion des oben beschriebenen interstitiellen Anteils). Beim Ausheizen auf 400°C steigt es zunächst kurzfristig wieder an (Rückdiffusion von Oberflächenpeak), um dann stetig zu sinken und sich gleichzeitig stark zu verbreitern. Selbst in Tiefen von ca. 5µ ist noch ein recht großer Anteil des Li nachweisbar. Beim Ausheizen auf 750°C sind nur noch wenige Prozent des ursprünglich implantierten Li, homogen in der Oberflächenschicht verteilt, verblieben.

Die Auswertung derProfilveränderung ab 400°C zeigt, daß die Aktivierungsenergie der Diffusion größenordnungsmäßig bei $(0,6 \pm 0,3)$eV liegt, der Frequenzfaktor der Diffusion ist etwa $D_o = 10^{-(2\pm1)} cm^2 s^{-1}$. Das bedeutet, daß Zwischengitterdif-

fusion vorliegen könnte. Die Ag(Li)-Proben wurden an Luft ausgeheizt. Starke chemische Korrosionseffekte, wie beim Niob, wurden hier nicht beobachtet.

Der Einfluß des Auslaufens des Li aus den Körnern in die Korngrenzen kann vernachlässigt werden, da die Ag-Kristallite durchschnittlich etwa 15µ groß sind.

Die implantierten Konzentrationen des Li liegen bei maximal einigen Prozent, fallen also in den Bereich der α-Ag-Li-Mischkristalle [20]. Ag und Li sind beliebig miteinander legierbar, eine Löslichkeitsgrenze existiert nicht. Ausscheidungen wie bei Nb sind daher hier unmöglich.

## 2.4 Korrosionseffekte

Bei den Versuchen wurden verschiedene Korrosionserscheinungen beobachtet, die mit der vorhergehenden Li-Implantation korreliert sind. Derartige Erscheinungen sind erst kürzlich bekannt geworden und wurden insbesondere von Dearnalley [21] ausführlich untersucht. Hier wurden folgende Effekte beobachtet:

a) Beim Erhitzen einer Niob-Probe auf 700°C für 1 Std. bei atmosphärischem Druck zeigte sich starke Oxydation zu weißem $Nb_2O_5$ (mehr als 0,1 mg/cm$^2$) im Gebiet vorheriger Li-Implantation. Die gleiche Erscheinung wurde bei mechanisch beschädigten Gebieten der Oberfläche (Kratzer, Ränder) und ansonsten sporadisch fleckenhaft verteilt (Materialstörungen, Oberflächenbeschädigungen) gefunden. Die übrigen Gebiete wiesen eine Grautönung aufgrund der Oxidation zu niedrigeren Oxidationsstufen auf, Abb. 10.

   Diese Ergebnisse stehen im Gegensatz zu Dearnalley [21]. Er zeigte, daß Dotierungen mit Elektronegativität 1 die Oxidation eher behindern statt fördern. Die hier vorgefundenen Korrosionseffekte sind wohl eher auf katalysatorische Effekte von geschädigten Gitterzonen zurückzuführen.

   Es wurde nach Entstehen des weißen Oxids das Konzentrationsprofil des Li gemessen. Das Profil blieb in der Lage unverändert, wies aber einen schwachen Ausläufer zu größeren Tiefen hin auf und war wesentlich kleiner.

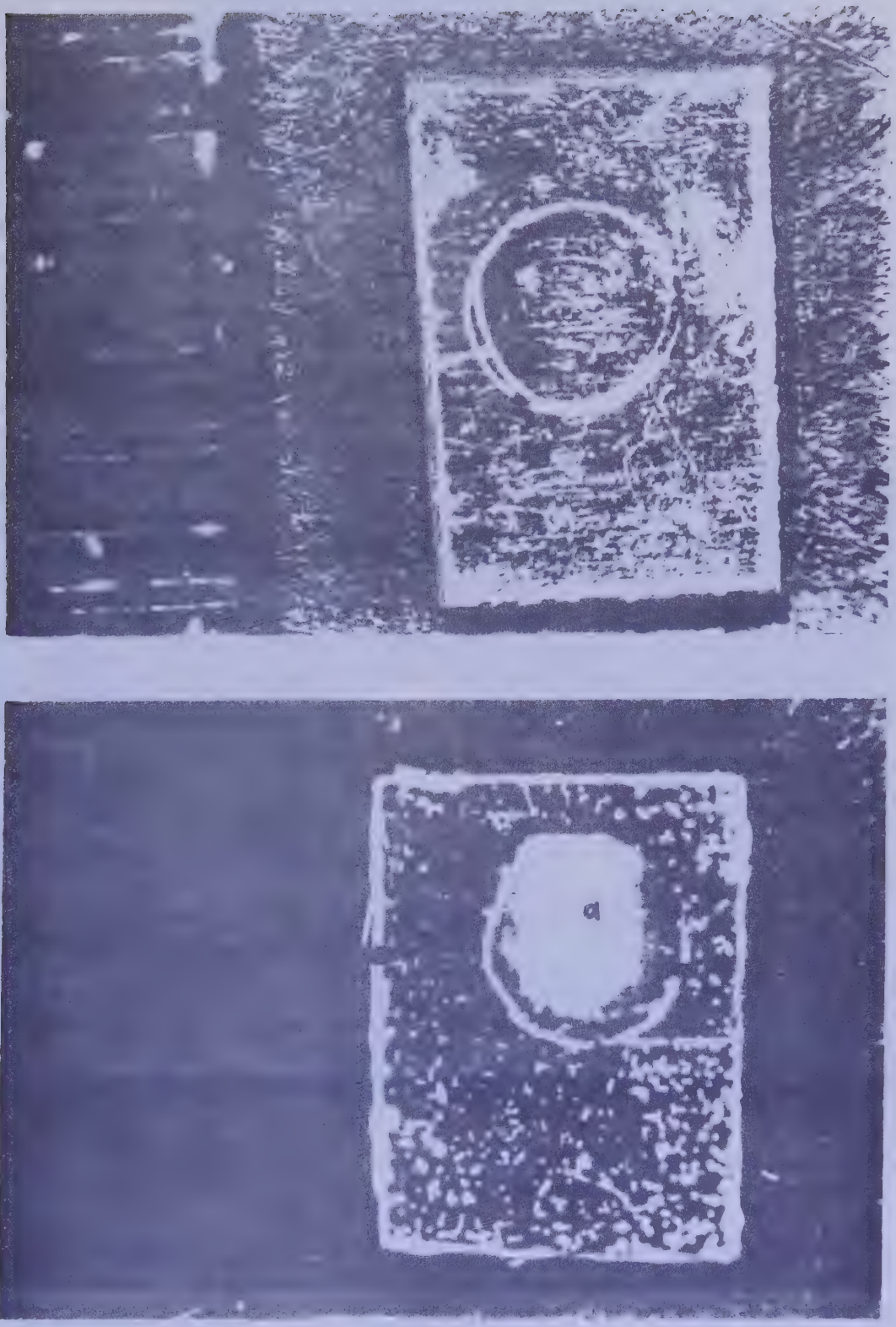



Abb. 10:

Oxidation eines bestrahlten Niob-Bleches bei 700°C an Luft nach 1 Stunde.
a) gleichwertiges Blech (Nr. 2) vor dem Erhitzen,
b) Blech (Nr. 1) nach dem Erhitzen.
Durch Bildung weißen hochoxidierten Pentoxyds treten hervor: a) die Zone des Implantates, b) Gebiete mit Kratzern an der Oberfläche, c) die Randzone der Probe, d) Gebiete, die wahrscheinlich Gitterdefekte aufweisen. Das übrige Gebiet (e) ist mit Oxyd niedrigerer Oxydationsstufe bedeckt.

Der Abstand zweier Teilstriche des nebenstehenden Maßstabs ist 1mm.

Das weist darauf hin, daß durch den Einfluß des Sauerstoffs die Diffusion von Li in Nb erleichtert wird.

b) Beim Erhitzen der Nb(Li)-Probe in Ar-Schutzgas blieben die bestrahlen Stellen blank, während die unbestrahlten rauher erschienen (Abb. 11). Vielleicht überwiegt bei extrem kleinen Sauerstoff-Rest-Partialdrucken, wie sie hier vorlagen, die nach Dearnalley erwartete Behinderung der Niob-Oxidation, und die Rauhigkeit der anderen Gebiete ist eine Folge geringfügiger Oxidation.

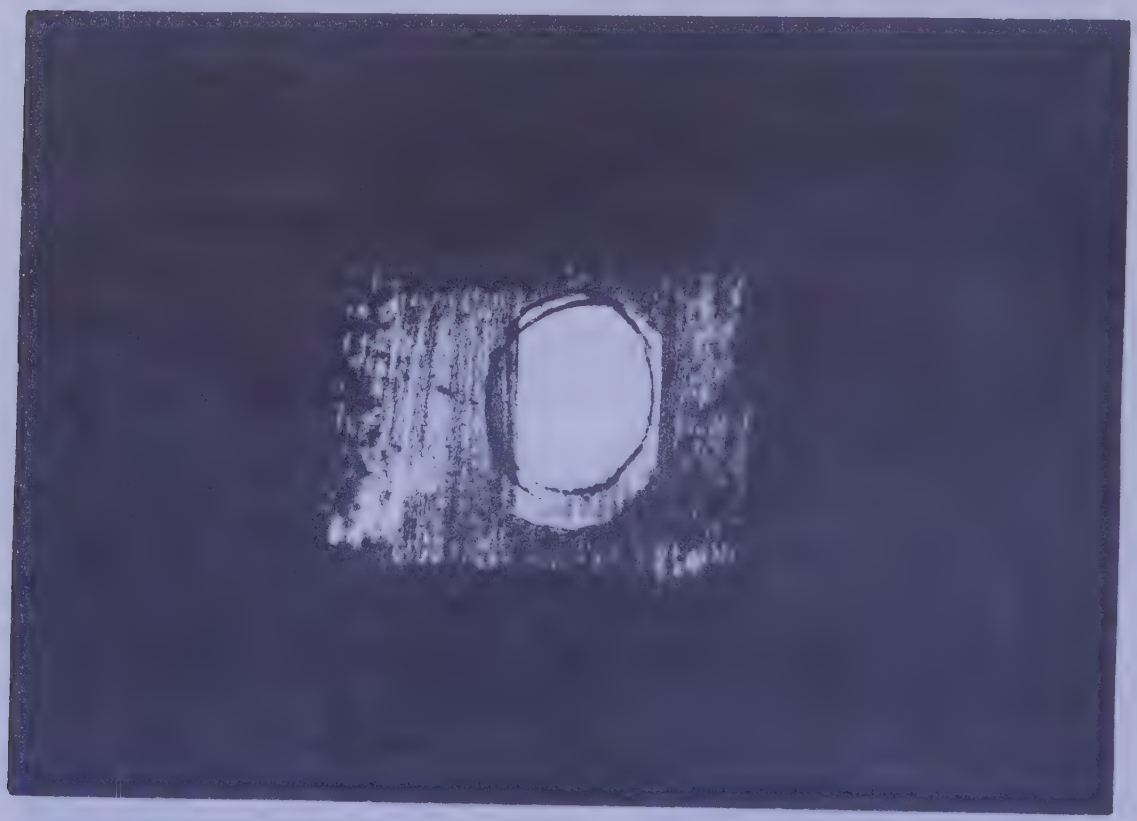


Abb. 11: Aussehen des Niob-Blechs Nr. 2 nach dem Ausheizen auf 990°C in einer Argon-Atmosphäre bei ca. $10^{-1}$ Torr. Schräge Beleuchtung.

Raster: 1mm Abstand.

Nach Polieren und Anätzen ($HF+HNO_3$, 1:1, konz.) war das Aussehen der Nb-Blech-Probe nach einstündigem Heizen auf ca. 1000°C genau umgekehrt: das bestrahlte Gebiet war rauh, das unbestrahlte blank. Eine mikroskopische Untersuchung, Abb.12, zeigte im bestrahlten Bereich viele 1 bis 10µ große dunkle Bereiche, die evtl. auf Li-Ausscheidungen zurückzuführen sind (hohe Li-Konzentration, ≳10%, implantiert bei Zimmertemperatur)

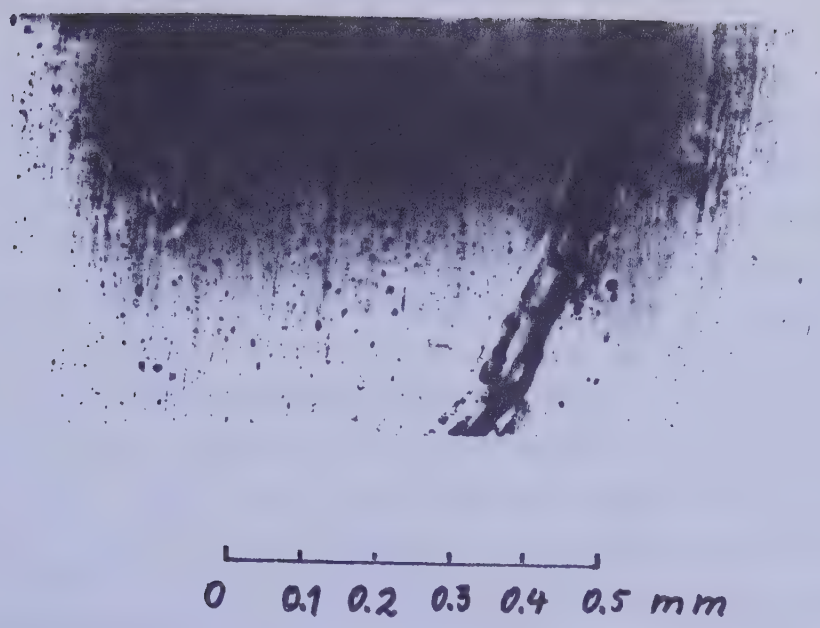



Abb. 12: Mikroskopisches Auflicht-Bild einer Nb(Li)-Probe, schwach poliert und geätzt. Links: Gebiet der Li-Implantation, rechts: kein Li implantiert, Mittelstruktur: Kratzer zum Markieren des implantierten Gebiets.

c) Auch die Ag(Li)-Proben wiesen nach Erhitzen an Luft auf 500°C eine oberflächliche Differenzierung auf, das mit Li beschossene Gebiet hatte eine größere Oberflächenrauhigkeit als das bestrahlte.

## 3 Anwendung der Diffusionsergebnisse

Bei einigen z.Z. zur Diskussion stehenden Fusionsreaktor-Konzepten steht flüssiges Li von ca. 800°C in direktem Kontakt mit Niob-Wänden. Zur Kenntnis des Materialverhaltens des Nb ist es wichtig zu wissen, wieviel Li sich im Nb während des Betriebs durch Neutronen-knock-on in der Wand ansammelt. Es wurde (ohne Berücksichtigung von Li-Diffusion in Nb und Erosion der Nb-Wand durch Zerstäubung und Korrosion) die Li-Implantat-Konzentration in Nb mit einer Monte-Carlo-Rechnung ermittelt [22]. Es ergaben sich Li-Konzentrationen von ca. 8% nach 2 Jahren Betriebszeit, was zu Li-Ausscheidungen und Anschwellen des Wandmaterials führen würde. Von Biersack [7] wurde kürzlich eine Rechnung über

das Konzentrationsprofil eingeschossener Ionen unter Berücksichtigung von Erosion und Diffusion durchgeführt. Setzt man, unter Berücksichtigung dessen, daß nur ca. 1% der Li bei unseren Bestrahlungsdosen getrappt wird und daß die beim Fusionsreaktor auftretenden Implantationsraten um einige Größenordnungen kleiner sind, in seine Formeln die hier bestimmte Diffusionskonstante von Li in Nb sowie eine Erosionsrate von 10µm/Jahr ein, so erhält man als maximale Konzentration des stationären Profils einige ppm bei Temperaturen unter 700°C und noch weitere ca. 3 Zehnerpotenzen weniger bei 1000°C. Dies ist wahrscheinlich innerhalb der Löslichkeit des Li in Nb. Vielleicht ist die wahre Erosionsrate im Fusionsreaktor aufgrund von Aggregat-Ablösung [23] durch schnelle Neutronen um Zehnerpotenzen höher als gegenwärtig angenommen wird. Dann sinkt die Maximalkonzentration des implantierten Li noch weiter und ist wahrscheinlich vernachlässigbar gegenüber der Konzentration des in der Nb-Wand gelösten Li.

# Teil C: Channeling und Blocking

## 1 Theoretischer Teil

### 1.1 Einleitung

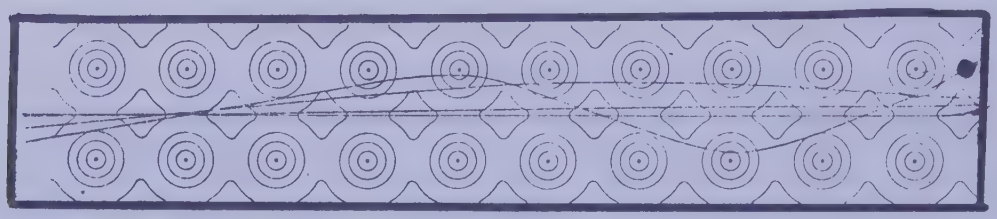
Für die Beschreibung der Wechselwirkung energiereicher Ionen mit amorphen Substanzen (bzw. mit nicht richtungsorientierten Kristallen) liegt die Annahme einer statistischen Atomverteilung zugrunde. Für Wechselwirkungen mit in Vorzugsrichtung orientierten Kristallen läßt sich dieses "Gasmodell" nicht anwenden, da hier Gitterstruktur- und Orientierung der Festkörper bezüglich der Ionenbahnen berücksichtigt werden müssen. Dies führt zur Einführung zweier nahezu komplementärer Effekte, dem "Channeling"- und dem "Blocking"-Effekt.

### 1.2 Der Channeling-Effekt

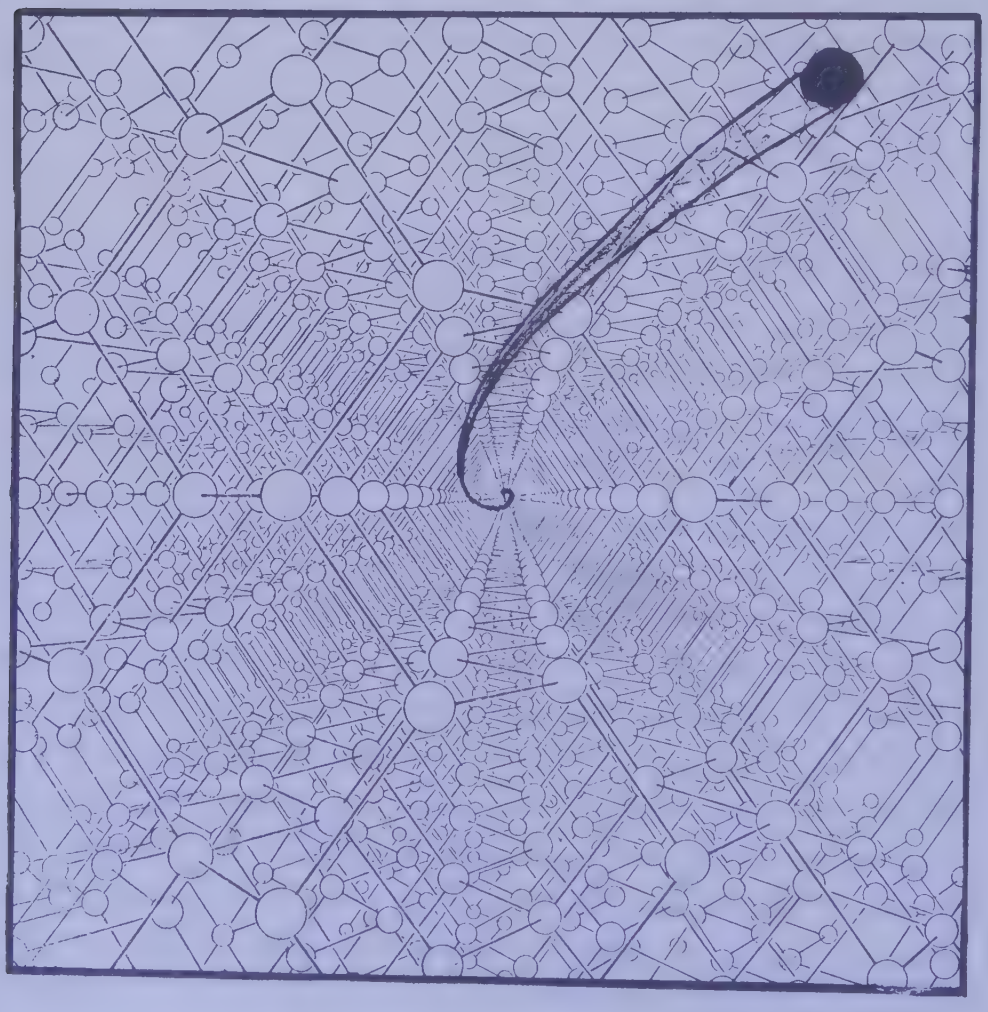
#### 1.2.1 Qualitative Beschreibung

Da sich die Gitteratome von Kristallen entlang den niederindizierten Richtungen zu Ketten bzw. Ebenen mit großen Zwischenräumen anordnen, zeigt der Kristall hier eine hohe Transparenz, Abb. 12. Atomketten bzw. Ebenen bilden für die unter kleinen Winkeln $\psi$ gegenüber ihnen einfallenden Ionen einen "Potentialberg", an welchem sie (bis zu einem kritischen Winkel $\psi_c$) reflektiert werden. Nach Durchqueren des Gebiets zwischen zwei Ketten (bzw. Ebenen), welches als "Potentialtal" wirkt, werden sie erneut von dem gegenüberliegenden Potentialberg streifend reflektiert, so daß ihre Bahn einer Schlängelbewegung gleicht (Abb.12a). Bei dreidimensionaler Betrachtung verlaufen die Bahnen i.a. spiralförmig (Abb. 12b). Diese Ionenbahnen setzen sich aus korrelierten Kleinwinkelablenkungen mit nur geringer Energieübertragung an die Gitteratome zusammen (Abb. 12a), so daß ihre Reichweite in diesen ausgezeichneten Richtungen besonders groß wird. Diese Art der Ionenbewegung in einem Festkörper wird als "Channeling"- oder "Gitterführungs"-Effekt bezeichnet.

Befindet sich innerhalb eines Kanals ein Streuzentrum (z.B. ein Fremdatom, Zwischengitteratom, Versetzung, thermisch stark ausgelenktes Kettenatom oder Elektron), so kann ein in diesem Kanal fliegendes Ion aus seiner ausgezeichneten Richtung durch eine Großwinkelstreuung abgelenkt werden.



a)



b)

Abb. 12: Channeling in Kristallen a) zweidimensionales Bild, Ionenbahnen unter verschiedenen Einschußwinkeln gegen die Kristallachse, b) dreidimensionales Bild, Beispiel für Gitter mit Diamantstruktur in <100> -Richtung [24].

### 1.2.2 Grundlagen der Channeling-Theorie

Die Ablenkung eines Ions in der Nähe einer Atomkette (bzw. Ebene) wird in der Theorie [25] nicht durch aufeinanderfolgende Einzelstöße, sondern durch die Bewegung in einem "verschmierten" Potential beschrieben (Kontinuummodell).

Der Potentialverlauf wird durch Mittelwertbildung der Einzelatom-Potentiale längs der Achse (Ebene) gewonnen, als atomares Potential wird i.a. das Thomas-Fermi-Potential eingesetzt.

Das Kontinuumbild impliziert die Erhaltung der durch die Geschwindigkeitskomponente parallel zur Kette (Ebene) gegebenen Energie $E_{\parallel}$ . Für die durch die zur Kette (Ebene) senkrecht stehende Geschwindigkeitskomponente gegebene Energie gilt folgender Erhaltungssatz:

$$E_{\perp} = E \cdot \sin^2\psi + U(r) \approx E\psi^2 + U(r) \qquad (11a)$$

im axialen Fall bzw.

$$E_{\perp} \approx E\psi^2 + Y(y) \qquad (11b)$$

im planaren Fall (U(r), Y(y) = gemitteltes Potential).

$\psi$ ist der Winkel, unter dem sich das Ion gegen die Kette (Ebene) bewegt. $E_{\perp}$ wird als "Querenergie" bezeichnet. Die Gln. (11) sind gültig nur dann, wenn die Energieverluste längs der Teilchenbahn vernachlässigt werden können.

### 1.2.3 Der kritische Winkel

Die Grenze für die Gültigkeit der Kontinuumnäherung ist nach Lindhard durch die Forderung gegeben, daß auch bei größter Annäherung an die Atomkette die Ablenkung der Ionen durch mehrere Einzelstöße zustande kommen soll. Dies gilt bis zu einer maximalen Bahnneigung $\psi_c$ gegenüber der Kristallachse (-ebene). Lindhard findet für diesen kritischen Winkel:

$$\text{axial:} \quad \begin{cases} \psi_c = \psi_1 = \left(\dfrac{2 Z_1 Z_2 e^2}{Ed}\right)^{1/2} & \text{für } \psi_1 \leq a_{TF}/d \\ & \text{(große Energien)} \\ \psi_c = \psi_2 = \left(\dfrac{C \cdot a_{TF}}{2 \cdot d} \psi_1\right)^{1/2} & \text{für } \psi_1 > a_{TF}/d \\ & \text{(kleine Energien)} \end{cases} \tag{12a}$$

$$\text{planar:} \quad \phi_c = 3/2 \left(\frac{\pi}{2} \cdot \frac{\psi_1^2}{\psi^2} \frac{C^2 \cdot a_{TF}^2}{d_s^2}\right) \quad \text{für } \psi^{*2} \ll \psi_1^2 \frac{\pi \cdot d_s}{2 \cdot C a_{TF}} \tag{12b}$$

$Z_1$ und $Z_2$ sind die Kernladungszahlen des stoßenden Ions bzw. gestoßenen Gitteratoms, d ist der Abstand der Atome der Kette, $C \approx \sqrt{3}$ , und $a_{TF}$ ist der Thomas-Fermi-Abschirmradius,

$$a_{TF} = 0{,}8853\ a_o \,/\, (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}$$

mit $a_o = 0{,}529 \mathring{A}$ = Bohrscher Radius.

$\psi^*$ ist der Winkel, den die Ionenbahn zu einer (benachbarten) Kristallachse in der betrachteten Ebene bildet, und $d_s$ ist der Abstand der Ketten dieser Ebene in der betrachteten Kristallachsenrichtung untereinander (Ebene hier als Kette aus Ketten betrachtet).

Die Potentialbarrieren der Ebenen sind um einen Faktor von ca. $4 \cdot Z_2^{1/3}$ niedriger als die der Achse, und die kritischen Winkel unterscheiden sich daher um einen Faktor von ca. $2 \cdot Z_2^{1/6}$ [25].

Die experimentell bestimmte Breite des gechannelten Strahls $\psi_{exp}$ gehorcht zwar gut der durch (12) gegebenen Abhängigkeit von E, $Z_1$, $Z_2$ und d bzw. $d_s$, unterscheidet sich aber von $\psi_c$ durch einen Faktor C', welcher die Temperatur- und Materialabhängigkeit beschreibt und i.a. zwischen 0,5 und 2 liegt ([28] - [31]).

Durch den Einfluß von Nullpunkts- und thermischen Schwingungen wird die Wahrscheinlichkeit $W_{ch}(\psi)$, daß ein unter dem Winkel $\psi$ bezüglich einer Achse (Ebene) fliegendes Teilchen gechannelt wird, für $\psi \gtrsim \psi_c$ erhöht, für $\psi \lesssim \psi_c$ erniedrigt (ohne Gitterschwingungen: $W_{ch}(\psi \geq \psi_c) = 0$, $W_{ch}(\psi < \psi) = 1$). Deshalb wird

die Einführung eines neuen kritischen Winkels $\psi_T$ nötig; er wird als halbe Halbwertsbreite von $W_{ch}(\psi,T)$ definiert (T = abs. Temperatur).

Varelas und Biersack geben in ihrer Arbeit einen Weg zur analytischen Berechnung von $\psi_T$ an [26]. Von Biersack wurden kürzlich in Anlehnung daran Ausdrücke zur Darstellung axialer Channeling-Effekte in verallgemeinerten Koordinaten entwickelt [45]. Es handelt sich einerseits um eine Darstellung mit

$$X_1 = E\, a_{TF}^2 / (2\, Z_1 Z_2 e^2 d)\ , \quad Y_1 = \psi_c\, d / a_{TF}\ , \tag{13}$$

(für starres Gitter)

andererseits um eine Darstellung in den Korrdinaten

$$X_2 = \langle r^2 \rangle / a_{TF}^2\ , \qquad Y_2 = \psi_c^2\, E\, d / (2\, Z_1 Z_2 e^2) \tag{14}$$

(mit Berücksichgigung von Gitterschwingungen).

Sie sind - zusammen mit den hier gewonnenen Meßergebnissen - in Abb. 36 zu sehen.

$\langle r^2 \rangle$ ist hierbei das mittlere thermische Auslenkungsquadrat. Es ist nach der Debeye-Theorie gegeben durch die die Masse der Gitteratome, die Debeye-Temperatur $T_D$ und eine Funktion G(y), welche $T_D$ und die Kristalltemperatur T enthält (tabelliert in [33]). $T_D$ ist ein Maß für die Energie der im Kristallgitter thermisch schwingenden Atome.

Es existieren auch empirisch gewonnene Formeln für $\psi_T$ (z.B. [32]). Für 20°C ist $\psi_T$ ca. 20% kleiner als $\psi_c$.

## 1.3 Der Blocking-Effekt

### 1.3.1 Qualitative Beschreibung

Ein Ion, welches sich von einem Gitterplatz aus gegen eine Atomkette oder Ebene unter kleinem Winkel bewegt, wird durch

eine Großwinkelstreuung am 1. Nachbaratom und mehrfache Kleinwinkelstreuung an aufeinanderfolgenden Nachbaratomen aus seiner Startrichtung abgelenkt. Die Behinderung der Bewegung der von Gitterplätzen aus emittierten Ionen in Kristallachsen (bzw. -ebenen)-Richtung heißt "Blocking"- oder "Schatten"-Effekt (Abb. 13). Er unterscheidet sich von der einfachen Rutherfordstreuung durch die kollektive Wirkung vieler hintereinander liegender Nachbaratome, durch die der Streuschattenbereich wesentlich schmaler und tiefer als bei der Einzelatomstreuung wird.

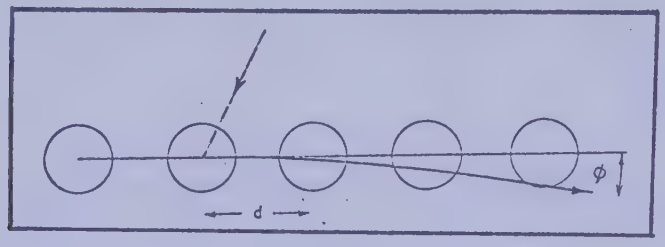



Abb. 13: Illustration des Blocking-Effekts [34]

Die Ionen können am Gitterplatz selbst durch radioaktiven Zerfall oder eine Kernreaktion erzeugt werden, sie können aber auch von außen in einer nicht dicht gepackten Richtung in den Kristall eingeschossen werden. Fliegen sie dann nach einer Großwinkelstreuung in Kristallachsen-.bzw. -ebenen-Richtung weiter, so verhalten sie sich genauso als ob sie vom Streuzentrum emittiert worden wären. In diesem Fall spricht man auch von Rückstreuexperimenten. Führt man ein Rückstreuexperiment an einem dotierten Kristall durch, so treten im Energiespektrum der rückgestreuten Teilchen sowohl von der Dotierung herrührende Peaks auf als auch solche, die von der Streuung an den Wirtsatomen stammen. Bei einem Blocking-Experiment hingegen, bei dem die registrierten Teilchen direkt im Kristall an der Stelle der zu untersuchenden Atomsorte erzeugt werden (z.B. durch eine Kernreaktion), findet man in deren Energiespektrum keinen auf die Wirtsatome hinweisenden Untergrund. Daher sind derartige Experimente den Rückstreuexperimenten vorzuziehen,

wenn entweder geringe Dotierungskonzentrationen vorliegen oder die Ordnungszahl der Dotierung klein gegenüber der des Wirtsgitters ist.

### 1.3.2 Grundlagen der Blocking-Theorie

Das emittierende Atom sei um r aus einer sonst starren Kette (Ebene) thermisch ausgelenkt, die Wahrscheinlichkeit für eine bestimmte Auslenkung durch eine Gaußverteilung beschrieben. Die Emission sei isotrop. Die benachbarte Kette (Ebene) wird durch ein Kontinuumpotential beschrieben. Nach der Emission des Teilchens wird für den Durchgang durch den Kristall die Erhaltung der Querenergie angenommen. Unter diesen Voraussetzungen erhält Lindhard [25] eine Formel für die Verteilung der Querenergie im axialen Fall, die für große Energien ($\psi_1 < a_{TF}/d$) gut gilt und aus der die Winkelverteilung folgt:

$$\pi_{out}(E_\perp) = \exp\left[-\frac{C^2 a_{TF}^2}{\langle r^2\rangle}\left(e^{2E_\perp/E\psi_1^2} - 1\right)^{-1}\right] - \exp(-r_o^2/\langle r^2\rangle) \qquad (15)$$

mit

$$r_o^2 = 1/(\pi dN)$$

Im planaren Fall findet man in der Literatur keine analytische Formel für $\pi_{out}(E_\perp)$, jedoch stellte Andersen [35] ein - allerdings nur numerisch für Beispiele gelöstes - Integral auf.

In der Näherung (15) wird der axiale Blocking-Dip recht gut wiedergegeben, jedoch fehlt die Blocking-Schulter, da der Ausdruck nicht größer als 1 wird. Das ist eine Folge des Kontinuumpotentials.

Die Halbwertsbreite des Blocking-Dips ist in Näherung durch den Rutherford-Streuschatten [25] gegeben:

$$\psi_{c,blocking} \approx \sqrt{2} \cdot \psi_{c,channeling} \qquad (16)$$

(Genauer erhält man $\psi_{c,bl.}$ aus (15) bzw. dem Andersenschen Integral [35].)

Die Diptiefe, $1 - \chi$, ist nach Lindhard [25] gegeben durch:

$$\chi = \chi_1 + \chi_2 \tag{17a}$$

mit

$$\chi_1 = N \cdot d \cdot \pi \cdot \langle r^2 \rangle \tag{17b}$$

und

$$\chi_2 = N \cdot d \cdot \pi \cdot a_{TF}^2 \tag{17c}$$

für axiales Blocking (mit $\langle r^2 \rangle = 2/3\overline{\rho^2}$) und

$$\chi_2 \approx 2 \cdot a_{TF}/d_{planar} \tag{17d}$$

für planares Blocking (mit $\langle r^2 \rangle = 1/3\ \overline{\rho^2}$). Die Formeln (17) gelten für relativ hohe Teilchenenergien und unter Berücksichtigung der Transmission durch die Oberfläche, aber ohne amorphe Oberflächenschichten. Komaki et al. [36] fanden empirisch aufgrund von Messungen an 1 ... 1,5 MeV Protonen und Deuteronen in Ge und Si, daß $\chi$ besser durch

$$\chi = (3{,}0 \pm 0{,}1) \cdot \chi_1 + (0{,}2 \pm 0{,}1) \cdot \chi_2 \tag{17e}$$

beschrieben wird.

## 1.4 Die Tiefenabhängigkeit der Gittereffekte

Bei einem auf einen Kristall längs einer Achse (Ebene) auftretenden Ionenstrahl varieren die Parameter von Channeling und Blocking mit der Eindringtiefe [29]. Das gleiche gilt für in einem Kristall erzeugte Teilchen, der Kristalloberfläche entspricht dann der Startort des Teilchens und der Eindringtiefe die bis zur Oberfläche vom Teilchen zurückgelegte Wegstrecke.

A) In den ersten Gitterschichten treffen die Projektile mit gleicher Häufigkeit wie bei einem amorphen Target die Gitteratome; die Rückstreurate ist hoch.

B) Beim Eindringen in das Gitter werden die Ionen von den Wänden der Kanäle abgestoßen und in einer bestimmten Tiefe zu

maximaler Dichte fokussiert ("Flux Peaking"). Die Teilchenbahnen laufen danach auseinander, um durch erneute Wandreflektionen wiederum in größerer Tiefe zusammenzutreffen. Diese Flußoszillationen wiederholen sich mehrere Male mit starker Dämpfung, da einerseits nicht alle Teilchen mit derselben Wellenlänge ($10^{2 \cdots 3}$ Å) im Kanal oszillieren, andererseits schlecht gechannelte Teilchen ($\psi \gtrsim \psi_{c,ch.}$) durch Streuung an den Wänden verlorengehen. Der krit. Winkel nähert sich dabei an $\psi_{c,ch.}$ an, die Rückstreuintensität nimmt stark ab.

C) Im Fall des Blocking können die von der Atomkette gestreuten Ionen in planare Kanäle eingefangen werden. Blocking- und Channeling-Patters treten also gleichzeitig bei Rückstreu- und Emissionsversuchen an dicken Kristallen auf (sog. "star pattern"). Durch das planare Channeling wird der axiale blocking dip teilweise aufgefüllt, d.h. man beobachtet eine Verkleinerung der effektiven Dip-Halbwertsbreite sowie eine Anhebung der Minimumintensität.

D) In großen Tiefen nimmt die Strahlintensität durch elektronisches und nukleares dechanneling exponentiell ab [29], die entsprechende Dipintensität also auch [39]:

$$(1 - \chi) \sim \exp(-\langle r^2 \rangle \cdot z/E) \quad . \tag{18}$$

D.h. die Rückstreuintensität nähert sich dem Wert für amorphe (bzw. nichtorientierte kristalline) Targets.

E) Beim Auftreten einer amorphen Oberflächenschicht unterliegt der Dip(Peak) einer zusätzlichen Verkleinerung durch Streuung. Anhand einer von Biersack [37] aufgestellten Formel wurde für 2 MeV-Tritonen in LiF berechnet, wie dick die Oberflächenschicht maximal sein darf, damit die Winkelstreuung bei der Tritium-Emission höchstens $\overline{\Delta\psi} \approx 0{,}1^{\circ}$ beträgt. Es ergibt sich eine maximal erlaubte Schichtdicke von ca. 200 Å.

## 1.5 Die Reversibilitätsregel

Wenn die Energieverluste im Kristall vernachlässigbar sind, kann die Ionenbewegung im Kristallgitter durch die Bahn in einem konservativen Feld beschrieben werden. Dann ist die Bahnrichtung umkehrbar. Werden in einem Rückstreuexperiment (Abb.14) Einschuß- und Beobachtungsrichtung vertauscht, so sind die relativen Rückstreuintensitäten (Verhältnis der gemessenen Intensitäten am Kristall zu denen einer amorphen Substanz unter sonst gleichen Bedingungen) gleich. Das ist die "Reversibilitätsregel" von Lindhard [25].

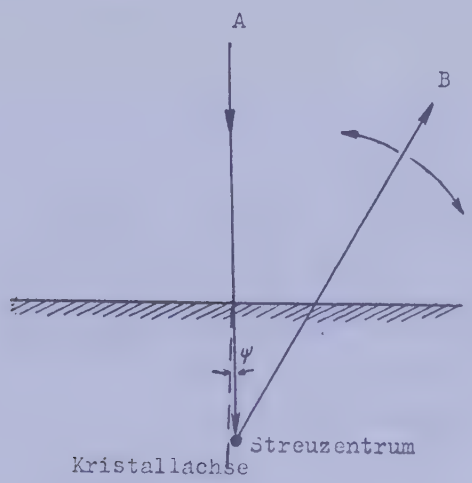



Abb. 14: Ein Rückstreuexperiment.
A: einfallende Ionen,
B: Detektor
Wegen Reversibilitätsregel auch A und B vertauschbar bei umgekehrten Richtungen ohne Änderung der Rückstreuintensität.

## 1.6 Gittereffekte nach Kernreaktionen mit Neutronen

Eine einfache Abschätzung zeigt, daß die Absorption des Neutronenflusses in Kristallen, die aus einem der in Tab. 1 aufgeführten Nuklide bestehen, für Blocking- bzw. Channeling-Versuche vernachlässigbar ist (Halbwertsdicke für Neutronenabsorption in LiF z.B. 3,3mm, also groß gegenüber der für Blocking wesentlichen Schichtdicke von ca. $10^{-4}$mm). In Tabelle 7a sind die Daten von hier untersuchten Kristallen zusammengestellt. Tabelle 7b enthält die mit diesen Daten aus den Formeln von Lindhard [25],

Andersen [31] und Komaki [35] ermittelten kritischen Winkel $\psi_c$ und $\psi_T$ sowie die Diptiefen $\chi$. (Bei LiF ist das erste Nachbaratom eines von einem Gitterplatz startenden Projektils je nach Richtung entweder ein F- oder ein Li-Atom. Da der erste Nachbar auf die Halbwertsbreite einen entscheidenden Einfluß hat, wurde hier als $Z_2$ die Ordnungszahl des jeweiligen ersten Nachbarn bei der Berechnung des Blocking-Dips eingesetzt.

Tabelle 7a: Zusammenstellung der Daten der hier verwendeten Kristalle

| Kristall | Struktur, Raumgruppe | Gitterkonst. d[Å] | Winkel d. Kristallzelle [Grad] | Nuklid-dichte $N$ [$10^{22}$ cm$^{-3}$] | Debeye-Tempor. $T_t$[°K] |
|---|---|---|---|---|---|
| LiF | fcc $O_h^5$ | 4,03 | 90 | 6,11 | 600 |
| Ge | diam. $O_h^7$ | 5,646 | 90 | 10,0 | 290 |
| Nb | bcc $O_h^9$ | 3,33 | 90 | 5,42 | 280 |
| $Na_2B_4O_7 \cdot 4H_2O$ (Kernit) | monoklin-prismat. $C_{2h}^4$-P2/a | a=7,0 b=9,2 c=15 | ß=108 | 10,4 | 440 |
| B | ß-rhombo-edrisch R$\bar{3}$m | 10,14 | 65,05 | 10,07 | 450 |
| $B_{12}C_3$ | rhomboedr. R$\bar{3}$m | 5,19 | 65,30 | 10,73 | 310 |

Tabelle 7b: Theoretische Daten für Blocking und Channeling bei den hier behandelten Kristallen.

| Kristall | Richtg. | Atomabstand [Å] | Effekt | Nächster Nachbar | Projektil | temperaturunabhängige Näherung [25] $\psi_c$ bzw. $\psi_c \cdot \Omega$ [Grad] | halbe Halbwertsbreite bei 293K nach [25], [26] bzw. [35] $\psi_T$ [Grad] | Diptiefe nach Lindhard [25] $\chi$ [%] | Diptiefe nach Komaki [36] $\chi$ [%] |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| LiF | <100> | 2,015 | Bl. | F | T | 0.56 | 0.36 | 4.0 | 6.2 |
| | | | | | α | 0.92 | 0.52 | 3.8 | 6.1 |
| | <110> | 2,85 | Bl. | Li | T | 0.27 | 0.18 | 7.9 | 9.1 |
| | | | | | α | 0,44 | 0.29 | 7.0 | 9.0 |
| | <111> | 3.49 | Bl. | F | T | 0.42 | 0.25 | 7.0 | 10.1 |
| | | | | | α | 0.70 | 0.40 | 6,6 | 10.1 |
| | Ebenen, Mittel | 2.3 ... 2.7 | Bl. | i.a.F | T | 0,16 | 0,08 | 18 | 10 |
| | | | | | α | 0,25 | 0,17 | 18 | 10 |
| Ge(Li) | <111> | 2,4 | Bl. | Ge | T | 0,9 | 0,7 | 1,1 | 1,5 |
| | | | | | α | 1,2 | 0,8 | 1,1 | 1,5 |
| | Ebenen, Mittel | ca.3,0 | Bl. | Ge | T | 0.1 | 0.1 | 7 | 3,2 |
| | | | | | α | 0,3 | 0,2 | 7 | 3,2 |
| Nb(Li) | <111> | 2,88 | Ch. | Nb | T | 0.6 | 0.5 | | |
| | | | | | α | 0.9 | 0.6 | | |
| | Ebenen, Mittel | ca.3,0 | Ch. | Nb | T | 0.1 | 0.1 | | |
| | | | | | α | 0.2 | 0.1 | | |
| Kernit | Achsen, Mittel | ca.1,5 | Bl. | O,B,Na | α | 0,6 | 0,4 | 4.7 | 6.7 |
| | | | | | Li | 2,1 | 1,2 | 3.6 | 6,4 |
| | Ebenen, Mittel | | Bl. | O,B,Na | α | 0.3 | 0,3 | 34 | 13 |
| | | | | | Li | 0,8 | 0,3 | 26 | 11 |
| Bor | <111> | 1,7... 1,9 | Bl. | B | α | 0,6 | 0,4 | 7,0 | 9,4 |
| | | | | | Li | 1.9 | 1.1 | 5,3 | 9,3 |
| | Ebenen, Mittel | dgl. | Bl. | B | α | 0,2 | 0,2 | 29 | 14 |
| | | | | | Li | 0,7 | 0,4 | 24 | 13 |

a) Ch.=Channeling, Bl.=Blocking. (Art des Effekts bei dotierten Kristallen dem Versuchsergebnis entnommen.)

# 2 Experimentelle Grundlagen

## 2.1 Einführung

Bei der Messung eines Gittereffekts steht grundsätzlich einem die Teilchen anisotrop emittierenden Kristall unter verschiedenen Richtungen ein Detektor gegenüber. In der hier vorliegenden Arbeit wurden zwei verschiedene Ausführungen dieses Konzpts entwickelt, der sog. Folienapparat, der zur Gewinnung großflächiger Übersichtsbilder von Channeling- und Blocking-Patterns ohne Energiediskriminierung dient, und der sog. Detektorapparat, mit dem Blocking- und Channeling-Kurven längs eines vorher ausgwählten Winkelbereichs mit Energiediskriminierung untersucht werden. Die Versuche müssen innerhalb des Reaktors stattfinden, da nur dort genügend hohe Neutronenflüsse zu finden sind, die die Versuchsdauern in erträglichen Grenzen halten.

Das als Baumaterial bei Reaktorexperimenten bevorzugte Al 99 stört wegen seiner (n,p)- und (n,α)-Reaktionen mit schnellen Neutronen. Zwar ist der Wirkungsquerschnitt klein im Vergleich zu dem des Li und B, jedoch sind die Aluminium-Flächen wesentlich größer als die untersuchte Kristallfläche. Als Abhilfe wird hier jede freie Al-Fläche lackiert. Zwar können schnelle Neutronen nun knock-ons aus dem Lack herausschlagen, diese werden aber bei beiden Versuchskonzepten aufgrund ihrer niedrigen Energie diskriminiert.

Weiterhin wird durch passende Versuchsanordnung der Untergrund an schnellen Neutronen, die sowohl störende Kernreaktionen in Al als auch knock-ons in Wänden und Detektoren auslösen, verringert: Hierzu werden die Apparaturen nahe der thermischen Säule eingebaut und der direkte Beschuß der Detektoren mit meist radial vom Core kommenden Neutronen durch Wahl eines tangential am Core vorbeiführendenKanals vermieden. Dies sind die Kanäle SNO am (inzwischen stillgelegten) Berliner Reaktor BER I und S 11 am Reaktor FMRB der PTB, Braunschweig. Der Fluß am Bestrahlungsort ist beim BER I bei voller Leistung (50 kW): $3 \cdot 10^{11}$, beim FMRB bei halber Leistung [44]: ca. $6{,}4 \cdot 10^{10} n_{th}/cm^2 sec$. Der Untergrund an

schnellen Neutronen beträgt beim BER I : $6 \cdot 10^9 n/cm^2 sec$, der Fluß epithermischer Neutronen am FMRB ist $1{,}5 \cdot 10^{-4}$ des thermischen Neutronenflusses. Der Gamma-Untergrund des BER I beträgt $3 \cdot 10^5 r/h$. Als Strahlabschirmung wurden in Berlin und Braunschweig für die jeweiligen Kanäle passende Kollimatoren gebaut. Der Innendurchmesser beider ist 31 mm, der Außendurchmesser bei SNO, BER I : ca. 10 cm, beim S 11, FMRB: ca. 18 cm. Die Länge ist bei beiden ca. 1 m. Der Berliner Kollimator war abwechselnd mit Blei- und Paraffinblenden aufgefüllt, beim Braunschweiger war die Schichtfolge vom Reaktor aus gesehen: Al-Pb-Cd-Borgips-Pb-Cd-Borgips-Pb-Cd-Al. Zusätzlich wurde noch eine 5 cm starke Bleiwand um die Strahlrohröffnung aufgestellt.

## 2.2 Der Folienapparat

### 2.2.1 Einzelheiten des Geräts

Beim Folienapparat steht einem fest montierten Kristall in festem Abstand ein Plastikdetektor gegenüber; die anisotrop emittierten Teilchen werden von der Folie aufgefangen, die Spuren nach Anätzen sichtbar, sie können mikroskopisch ausgezählt werden; die Verteilung der Spurendichte liefert die Channeling- bzw. Blocking-Patterns (Abb. 15a).

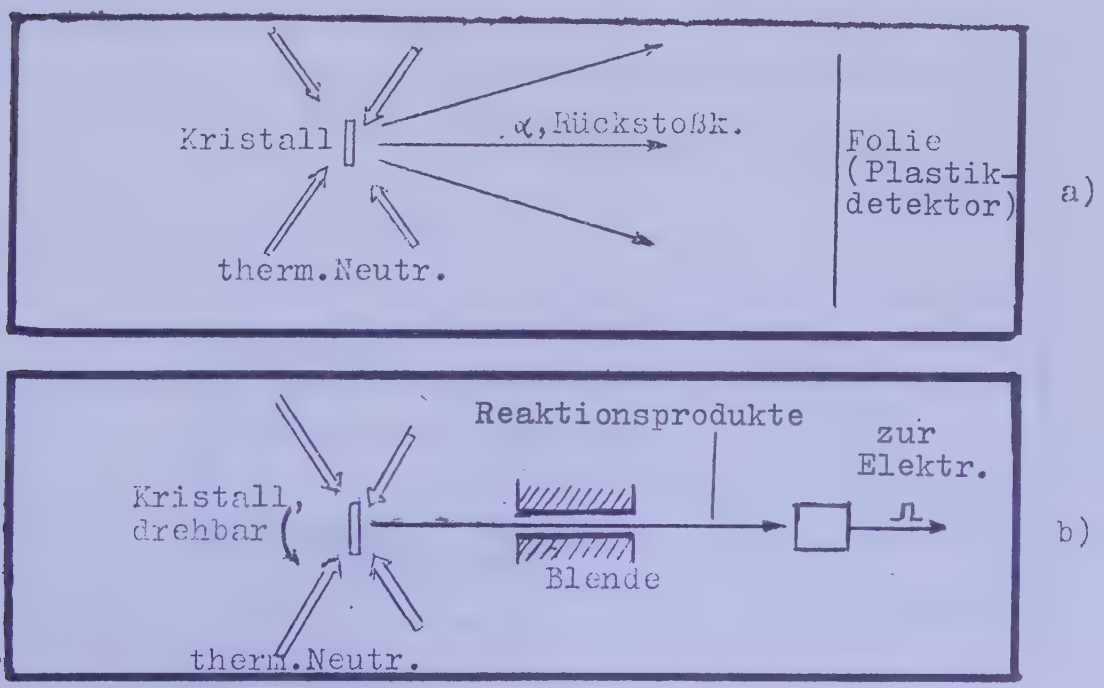



Abb. 15: Prinzipieller Aufbau der verwendeten Versuchsappraturen
a) Folienapparat, b) Detektorapparat.

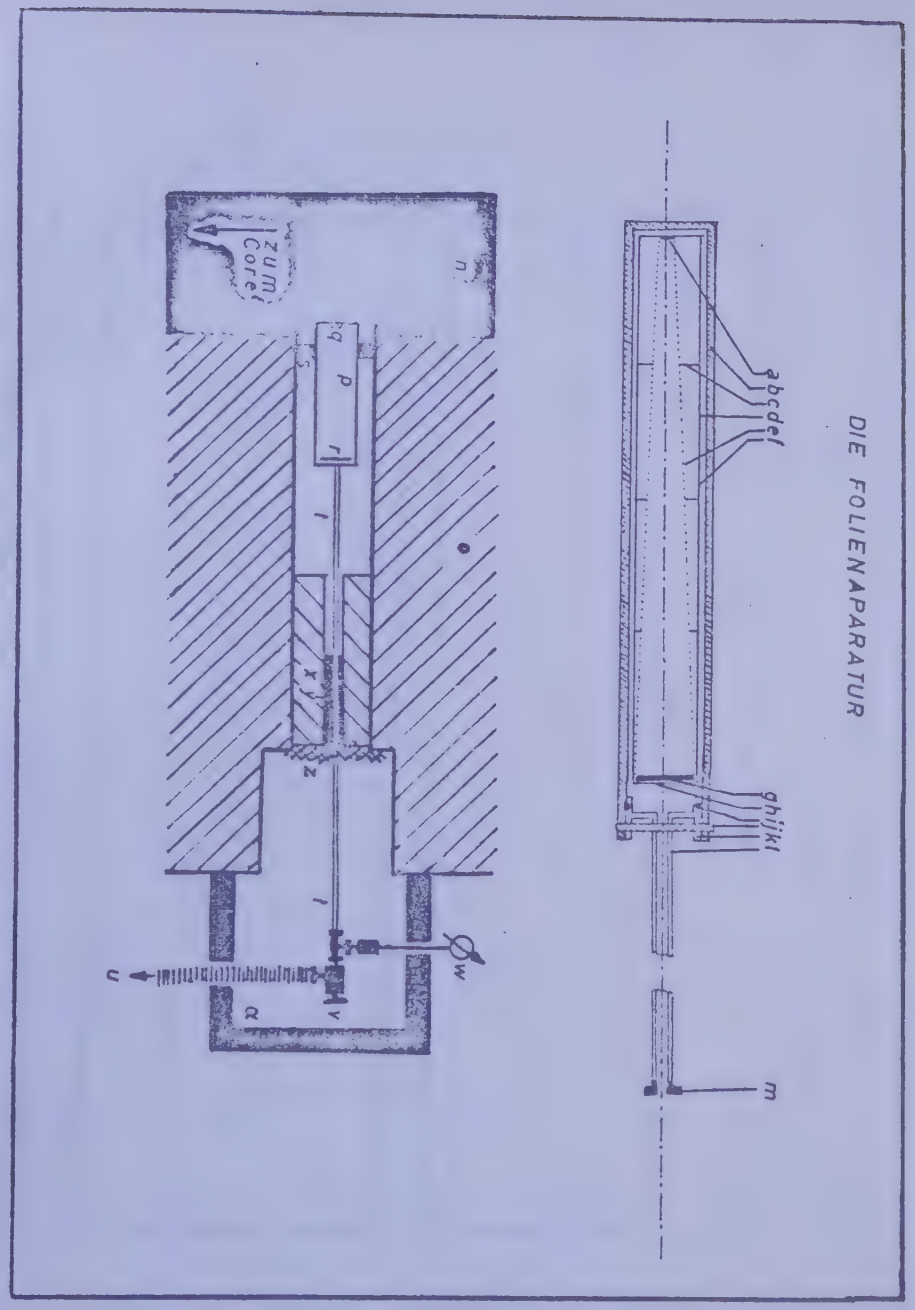



Abb.16 :

Die Folienaparatur:

a Kristall
b Gehäuse
c Blendensystem
d Einschub-Gerüst
e Strahlengang im Gerät
f Blechverbindung zwischen den beiden Scheiben des Gerüstes
g Folie
h Scheibe des Einschub-Gerüstes, ‖ zu der anderen mit Kristall
i Dichtungsring
j Splint zur Sicherung des Deckels
k Deckel der Folienaparatur
l Vakuumzuleitung
m Vakuumflansch, abschraubbar für Montage
n thermische Säule des FMRB (Graphit)
o Betonabschirmung des FMRB
p Folienaparatur im Reaktor, Gehäuse
q Ort des Kristalles im Reaktor
r Ort der Folie im Reaktor
s Distanzstück zur zentrischen Lagerung
t Vakuumzuleitung im Reaktor
u Tombakrohr zur Vorvakuumpumpe
v Ventil
w Vakuummeßröhre mit Anzeigegerät
x Kollimator zur Strahlungsabschirmung
y Polyäethyleneinschub zur Abschirmung
z Bleiwolle zur Abschirmung
α Bleiburg vor dem Kanalausgang zur Abschirmung

Zusammensetzung des Kollimators (x):
(vom Reaktorinnern nach außen gesehen)

| | | |
|---|---|---|
| 10 mm Al 99-Wand | 100 mm Pb | Ø außen 18cmm |
| 100mm Pb | 1 mm Cd | innen 32mm |
| 1 mm Cd | 400 mm Borgips | Gewicht ca.120 kp |
| 300mm Borgips | 100 mm Pb | |
| | 50 mm Al-Deckel | |

Kristall und Folie befinden sich in einer evakuierbaren Al-99-Büchse auf einem herausnehmbaren Gerüst. Die Büchse wird mit einem vakuumdichten Stopfen verschlossen, an den eine etwa 2 m lange Vakuumzuleitung angeschweißt ist. Die Dimensionierung der Apparatur ist:
Abstand Kristall-Folie: 80cm, max. Länge ohne Vakuumleitung: ca. 85cm, Foliendurchmesser: 7 - 8 cm, max. Außendurchmesser: 10 cm, Kristalldurchmesser: 3 mm, Auflösung (volle HWB): $\varepsilon \approx 0{,}2^{\circ}$, erfaßbarer Winkelbereich: $5x5^{\circ}$; Skizze des Geräts: Abb. 16.

Das einschiebbare Gerüst besteht aus zwei genau parallel zueinander und senkrecht zur Gerüst-Mittelachse justierten Al-Scheiben, verbunden durch zwei gewinkelte Bleche mit 80 cm Länge. Zur Vermeidung von Teilchenstreuung an den Wänden sind ca. alle 20 cm dünne Blenden eingefügt. Kristall und Folie werden auf die beiden Gerüst-Scheiben mit UHU geklebt. Der Klebstoff muß beim Befestigen der Folie schon leicht angetrocknet sein und darf nur an einigen kleinen Stellen aufgebracht werden, da er die Folie anlöst.

Die Montage des Kristalls erfolgt je nach Untersuchungsobjekt und -richtung unterschiedlich. Ist die Emissionsrichtung genau senkrecht zur Spaltfläche eines Ionenkristalls (wie z.B. LiF, {100}) so wird der Kristall direkt mit seiner glatt gespaltenen Rückseite auf die Unterlage geklebt. Sollen andere Hauptkristallachsenrichtungen untersucht werden (z.B. <100>,<111>), so wird der Kristall auf einem vorher genau angefertigten Al-Prisma befestigt und dieses dann festgeklebt. (Abb. 17).

Bei Kristallen, die nicht spaltbar sind und bei denen die Oberfläche nicht mit einer Hauptkristallebene übereinstimmt (z.B. Bor), wird eine justierbare Halterung verwendet, bestehend aus zwei gegenüberliegenden, durch 3 Schrauben gegeneinander verstellbaren Al-Plättchen. Auf das eine Plättchen wird der Kristall geklebt, das andere dient nach erfolgter Justierung zum Befestigen des Goniometers auf der Scheibe des Einschubgerüsts (Abb.17b). Die Justierung erfolgt in diesem Fall durch Laue-Aufnahmen, aus denen man die Abweichung der Kristallachse von der Geräteachse bestimmen kann. Das Goniometer wurde zur schnellen Justierung so

ausgelegt, daß eine volle Schraubendrehung einer Abweichung von 1 Grad von der früheren Richtung entspricht. Die erreichbare Einstellgenauigkeit ist beim direkten Aufkleben eines Kristalls etwa $\pm$ 1 ... 2 Grad, bei Verwendung der Halterung etwa $\pm$ 1/4 Grad. Das ist ausreichend, da man auf der Folie einen Winkelbereich von ca. 5 x 5 Grad erfaßt. Eine kleine Abweichung von der Geräteachse bedeutet, daß der Blocking-Dip (Channeling-Peak) nicht zentrisch die Folienmitte trifft, sich jedoch noch auf der Folie befindet. Das Gerät wird auf $7 \cdot 10^{-2}$ Torr mit einer Leybold-Vorvakuum-Pumpe evakuiert. Dieser Druck ist ausreichend, denn die Reichweite der emittierten Teilchen ist bei diesem Druck einige hundert Meter, und die Winkelstreuung auf 80 cm Entfernung ist bei diesem Druck vernachlässigbar.

Das Gerät wird in das Innere eines Reaktorkanals geschoben, und zum Strahlenschutz wird der Kanal anschließend mit einem Kollimator verstopft. Der Vakuumanschluß der Folienapparatur wird durch die Durchbohrung des Kollimators durchgeführt. Die Aktivität beträgt 3 Tage nach einem Versuch bei der Folienapparatur ca. 2,5 ... 3 mR/h, beim Kollimator wesentlich weniger.

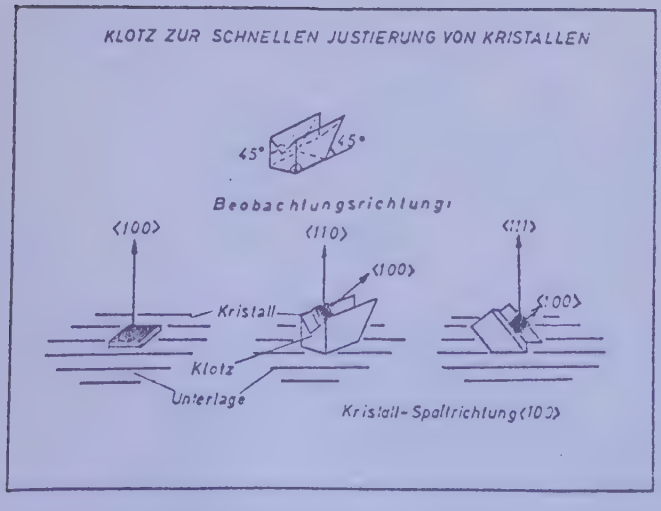



Abb. 17a)

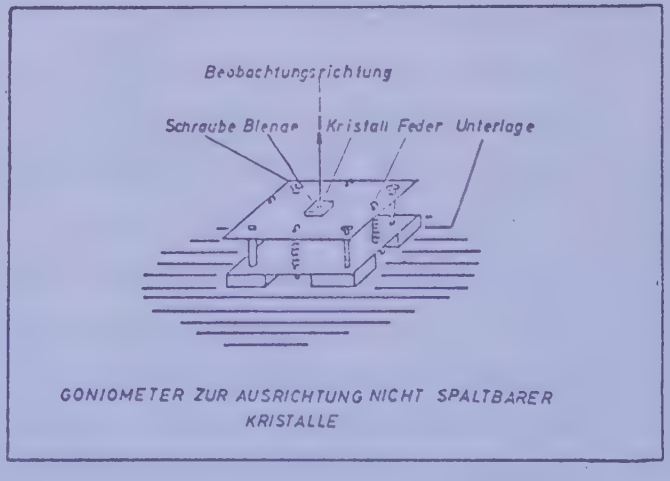



Abb. 17b)

### 2.2.2 Die Teilchenregistrierung mit Plastikdetektoren

Die Teilchenregistrierung erfolgt bei diesem Versuch mit einer Folie. Die in diese Folie eingeschossenen Teilchen erzeugen dort (offensichtlich irreversible) Strahlenschäden, die dem Angriff stark ätzender Substanzen weniger widerstehen als der unzerstörte Bereich. Als Folge sieht man nach einiger Zeit Ätzgrübchen unter dem Mikroskop. Nach Varnagy et al. [40] lassen sich mit Plastikdetektoren Teilchen bis hinunter zur Massenzahl m = 1 und Energien von ca. 300 keV zu 100% registrieren.

Plastikdetektoren sprechen nicht auf $\beta$- oder $\gamma$-Strahlung an und sind auch unempfindlich gegenüber thermischen Neutronen. (Diese Unempfindlichkeit gegenüber dem Reaktoruntergrund, im Gegensatz zu fotografischen Emulsionen, ermöglicht die Durchführung des Experiments innerhalb des Reaktors). Lediglich schnelle Neutronen erzeugen bisweilen in der Folie oder in lacküberzogenen Flächen der Apparatur Primär-knock-ons, die sich nach dem Anätzen in kleinen Ätzgrübchen bemerkbar machen. Jene sind aber sehr klein und können von $\alpha$- und Triton-Spuren diskriminiert werden. Die "Belichtungszeit" der Folien liegt bei einer einigermassen genauen Messung beinahe in derselben Größenordnung wie bei der fotografischen Registrierung. Denn um eine Genauigkeit von größenordnungsmäßig einem Prozent pro 0,1 Grad-Raster beim Blocking-Experiment zu erhalten, muß die Spurendichte pro $mm^2$ Folie etwa $10^4$ betragen. Bei einer Fotoplatte hingegen beginnt das Auftreten einer makroskopisch sichtbaren Schwärzung ab ca. $10^5$ Spuren/$mm^2$.

Ist die Teilchenzahl auf der Folie groß genug, so läßt sich nach dem Anätzen sogar makroskopisch eine Spurenverteilung gewinnen. Denn die Folieist an Stellen großer Spurendichte an der Oberfläche etwas matter als in der Umgebung. Der recht schwache optische Kontrast kann durch Einreibung von Stempelfarbe oder besser noch von fluoreszierenden Farbstoffen im UV-Licht verstärkt werden [41]. Die Sichtbarmachung bestrahlter Gebiete für das bloße Auge gilt jedoch nur für höhere Spurendichten (ab ca.

$10^7$ Spuren/$cm^2$), wie sie leider in den hier durchgeführten Blocking-Experimenten nicht auftreten.

Im hier vorliegenden Fall müssen die Spuren einzeln unter dem Mikroskop ausgezählt werden. Das birgt wegen der geringen Spurengröße einige Schwierigkeiten. Es muß eine starke Vergrösserung gewählt werden. Dadurch bekommt man aber nur relativ wenige Spuren ins Gesichtsfeld. Also muß für eine hinreichend gute Statistik eine größere Zahl von Gesichtsfeldern pro Meßpunkt ausgewertet werden. Die manuelle Auswertung ist wegen der grossen Zahl von auszuwertenden Rasterpunkten unmöglich. Es muß hierzu ein elektronisches Gerät eingesetzt werden. Das Quantimet 720 der Firma Metals Research hat sich hierfür als sehr geeignet erwiesen. Die anfangs eingestellte Bildfläche wird automatisch auf ihre Spurendichte hin ausgewertet, das Ergebnis ausgedruckt, und die Probe automatisch um einen vorher eingestellten Wert weitertransportiert. Dann erfolgt der gleiche Zyklus von vorne. Bei dieser Arbeitsweise wird eine Auswertungsgeschwindigkeit von max. ~1 Bild/sec erreicht, so daß eine Folie an ca. 1 Arbeitstag ausgewertet werden kann. Leider stand nicht für alle Auswertungen dieses Gerät zur Verfügung. In diesen Fällen wurde das ältere Modell Quantimet B zur Auswertung benutzt. Es arbeitet prinzipiell wie das neue Modell, hat jedoch ein wesentlich kleineres Gesichtsfeld, ein schlechteres Mikroskop, keinen automatischen Probentransport und keine Ausdruckmöglichkeit. Daher brauchte man mehrere Wochen, um eine Folie mit derselben Genauigkeit wie beim Quantimet 720 auswerten zu können. Um auch hier die Versuchsdauer erträglich zu halten, wurde die Anforderung an die Auflösung und Genauigkeit notgedrungen herabgesetzt.

Eine weitere Schwierigkeit bei der Folienauswertung ist der geringe Bildkontrast zwischen Spur und Untergrund. Abhilfe bietet [42] die Betrachtung unter einem Differential-Interferenzmikroskop nach Normanski. Hier werden Spur und Untergrund in verschiedenen Farben sichtbar gemacht. Leider stand dieses Gerät jedoch nicht zur Verfügung. Für die elektronische Registrierung im Quantimet erwies es sich als recht brauchbar, die angeätzte Folie zwischen zwei Deckgläschen im Mikroskopieröl oder durchsichtiges Kunstharz einzubetten. Wahrscheinlich werden in den Ätzgrübchen

(ca. 1µ) durch das Öl (Harz) kleine Luftblasen eingeschlossen, die dann als dunkle Punkte erscheinen. Wegen der geringen Spurengröße fällt es allerdings schwer, Spuren und kleine Schmutzteilchen zu unterscheiden.

Es wurden auch angeätzte Plastikdetektoren mit Gold bedampft und im Scanning-Elektronenmikroskop untersucht. Diese Methode erwies sich als vorteilhaft, da 1. die Tiefenschärfe der Bilder größer war, 2. ein größerer Bildausschnitt untersucht werden konnte, 3. die Spuren kontrastreicher erschienen und 4. keine störenden Staub- und Schmutzteilchen während der Messung auftraten. Jedoch kann durch inhomogene oder zu dicke Goldbedampfung leicht das Meßergebnis (durch Zudecken kleinerer Gruben) verfälscht werden. Als Plastikdetektor wird hier die Folie "Triafol TN" der Firma Bayer, Leverkusen (Acetatcellulose) von ca. 1mm Dicke verwendet. Das Ätzmittel ist ([42]) 28%ige KOH bei 60°C. Die Ätzdauer beträgt 1 - 3 Stunden. Ein oft [40] empfohlener Zusatz von $KMnO_4$ konnte den Ätzvorgang nicht verbessern.

## 2.3 Der Detektorapparat

### 2.3.1 Der Aufbau des Geräts

Beim Detektorapparat befindet sich der Kristall auf einem Goniometer, welches ferngesteuert um kleine Winkel geschwenkt werden kann. Durch eine Lochblende gelangt ein ausgwählter Teilchenstrahl auf einen Halbleiterdetektor; die entstehenden Pulse werden mit einem Vielkanalanalysator registriert, es findet also eine Energiediskriminierung statt (Abb. 15b).

Die Detektorapparatur ist im Prinzip ein etwa 2,25 m langes und 3 cm dickes Al 99-Rohr. An dem zu bestrahlenden Ende befindet sich eine abnehmbare Kappe, in der das Goniometer sitzt, welches den Kristall aufzunehmen hat. Am anderen Ende befindet sich eine Verdickung, welche den Halbleiterdetektor und die Strom- und Vakuumanschlüsse enthält. Zwischen Kristall und Detektor, in der Mitte des Rohrs, sind Blenden aus Blei und Poly-

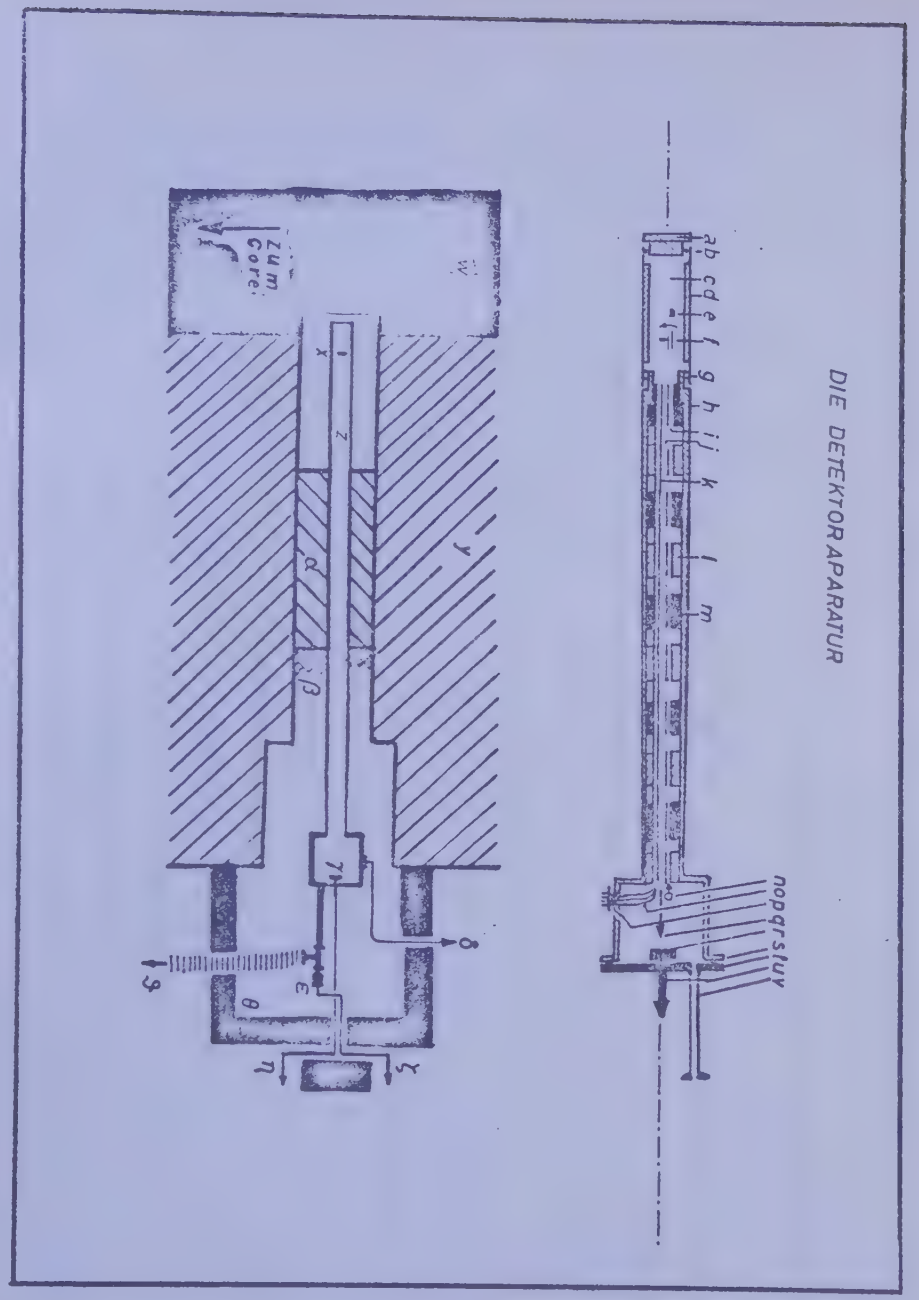



Abb.12:

Die Detektoraparatur:

a Stopfen für Goniometerkappe
b Dichtung
c Ort des Goniometers. Genaueres siehe Abb. Nr.13,14
d Goniometerkappe(Details in Abb.13)
e Ort der Fotozelle
f Ort der Drehblende mit Kristall
g Dichtungen(Details des Überganges Kappe-Rohr in Abb.14)
h Rohr
i Blende für optische Justierung
j Blende für Teilchenstrahl
k Kabelschacht für Goniometer,Fotoelement,Thermowiderstand
l Polyaethylenblenden
m Bleiblenden
n Lämpchen für opt. Justierung
o Kabel für Goniometerkopf-Stromversorgung
p Kontakt für Versorgungsleitung
q Teilchenstrahl
r Detektor
s Detektorraum mit Dichtung
t Deckel
u Koaxkabel zum Vorverstärker
v Vakuumzuleitung
w thermische Säule des FMRB ( Graphit)
x Ort des Kristalles im Reaktor
y Betonabschirmung des FMRB
z Detektoraparatur im Reaktor
$\alpha$ Kollimator
ß Bleiwolle
$\gamma$ Ort des Detektors
$\delta$ Versorgungsleitungen für Goniometerkopf
$\varepsilon,\zeta$ Vakuummeßröhre mit Zuleitung
$\eta$ Koaxkabel zum Vorverstärker
$\vartheta$ Tombakschlauch zur Vorvakuumpumpe
$\theta$ Bleiburg zur Abschirmung vor dem Kanalausgang

äthylen, welche einerseits den zu untersuchenden Teilchenstrahl ausblenden sollen, andererseits als Strahlenschutz für die aus dem Reaktor kommenden Neutronen und Gammas wirken. In der das Goniometer enthaltenden Kappe sind außerdem noch Einrichtungen für die optische Justierung des Kristalls untergebracht.

Es sind 3 Bohrungen in den Blenden vorgesehen. Die eine Bohrung nimmt insgesamt acht Kabel auf, die zur Steuerung und Versuchskontrolle bzw. als Reservekabel dienen. Die zweite Bohrung in der Mitte ist die Blende, durch die die aus dem Kristall tretenden Teilchen zum Detektor hin fliegen. Die dritte Bohrung dient zur Aufnahme der optischen Justierung. Die durch die Blenden erreichte Winkelauflösung ist $\varepsilon = 0{,}13^{\circ}$ (volle Halbwertsbreite). Zwischen den einzelnen Blenden sind Zwischenräume, die dafür sorgen, daß zu stark divergente Strahlen nicht an den Wänden zurückgestreut, sondern absorbiert werden.

Die Goniometerkappe läßt sich vakuumdicht auf das Rohr stekken; die Konstruktion ist so ausgelegt, daß bei Abnahme der Kappe und erneuter Montage die Kappe in ihrer Lage in Bezug auf das Rohr nicht verändert wird (damit die Reproduzierbarkeit der Winkeleinstellung gewährleistet ist).

Das Hauptproblem liegt bei der Detektorapparatur bei der Konstruktion des Goniometers, welches den Kristall drehen soll. Denn einerseits ist die geforderte Einstellgenauigkeit wegen der geringen Schrittweite ($0{,}04^{\circ}$) sehr groß, andererseits muß das Gerät, um die Aktivierung klein zu halten, miniaturisiert sein. Das Goniometer wurde in einer Veröffentlichung [43] bereits ausführlich beschrieben. Abb. 18 - 20 zeigt die konstruktiven Einzelheiten von Detektorapparat und Goniometer.

Um eine einfache Montage der Goniometerkappe auf das Blendenrohr zu erreichen, wurde die Konstruktion nach Abb. 20 gewählt. Sämtliche elektrische Kontakte werden durch Federn aneinandergepaßt. Der Gegendruck kommt dadurch zustande, daß das Rohrinnere evakuiert ist. Doppelte Dichtringe geben größere Si-

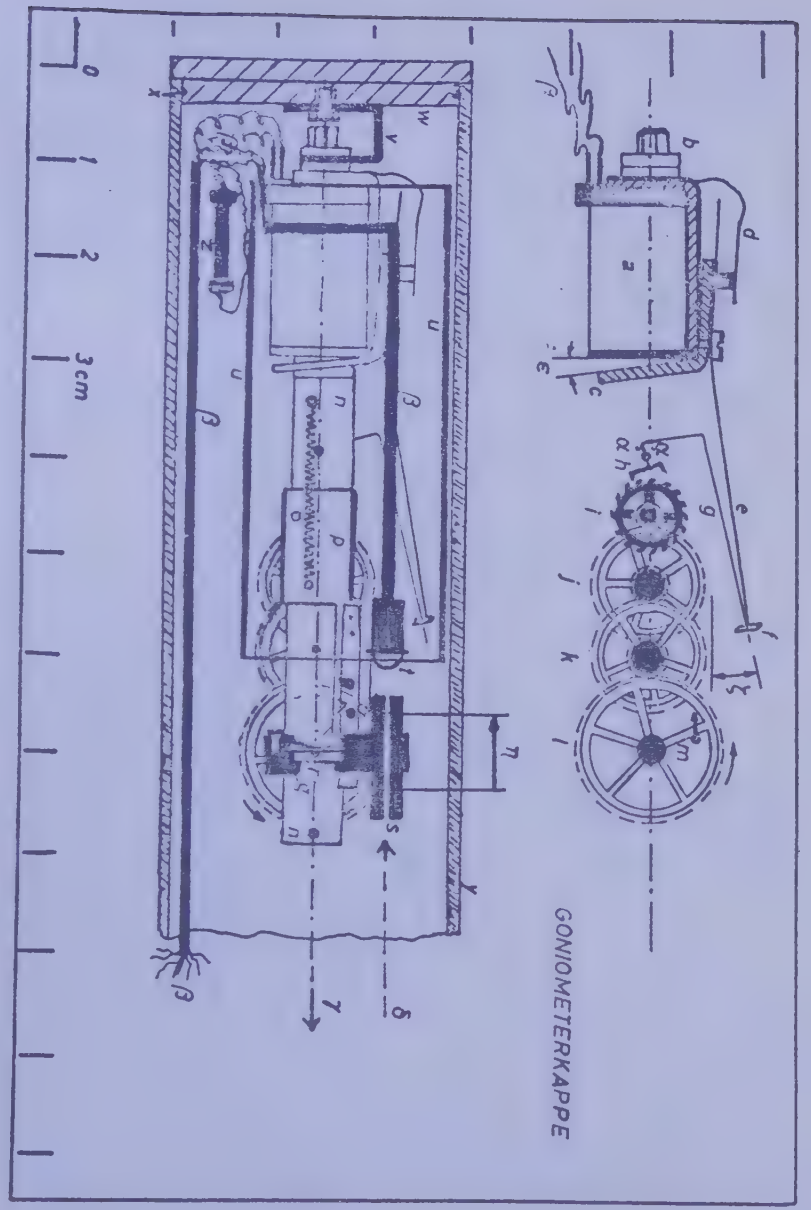



Abb.19:

Goniometerkopf:

| | |
|---|---|
| a | Magnet |
| b | Befestigungsschraube für Goniometer |
| c | Anker des Magneten |
| d | Rückstellfeder |
| e | Draht für Kraftübertragung vom Magneten |
| f | Drahtschlinge für Kraftübertragung auf g) |
| g | Draht zur Kraftaufnahme für die Ankerbewegung |
| h | Anker des Goniometer-Uhrwerks |
| i | Ankerrad und Ankertrieb |
| j | Sekundenrad und Sekundentrieb |
| k | Zwischenrad und Zwischentrieb |
| l | Minutenrad mit Fassung für Kristallhalter |
| m | Angriffspunkt der auf das Uhrwerk wirkenden Kraft |
| n | Goniometergestell |
| o | Spiralfeder für die Bewegung des Uhrwerkes |
| p | Gleitschlitten für die Halterung des in die Speiche des Minutenrades eingreifenden Hebels an der Stelle z) |
| q | Kristallhalter |
| r | Kristall |
| s | Drehblende |
| t | Fotoelement |
| u | Schutzblech um Goniometer |
| v | Goniometer-Befestigung am Stopfen |
| w | Stopfen |
| x | Dichtring |
| y | Goniometerkappe |
| z | Thermowiderstand |
| $\alpha$ | Begrenzungsstifte für Ankerbewegung |
| ß | Stromzuleitungen |
| $\gamma$ | Teilchenstrahl |
| $\delta$ | Lichtstrahl |

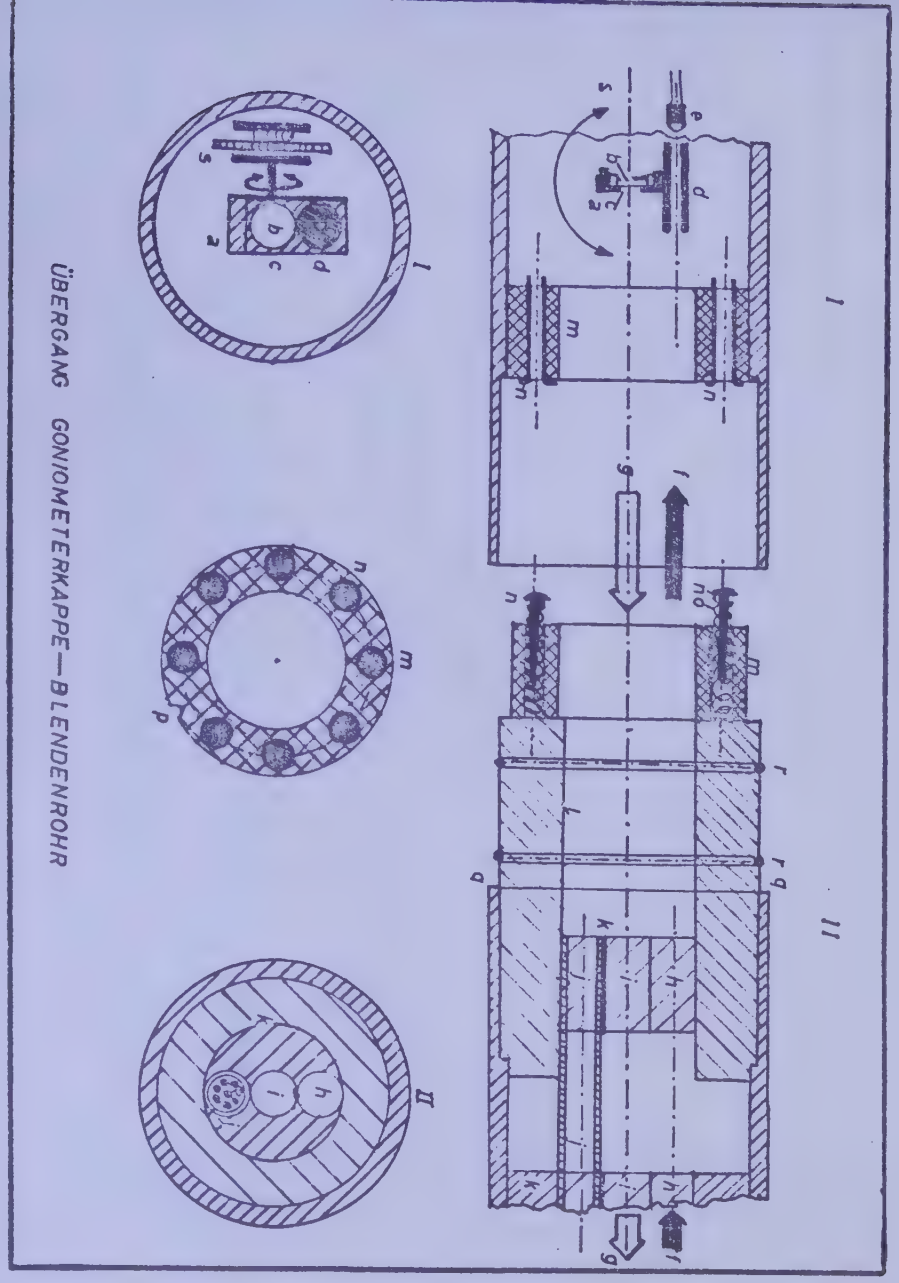



Abb.20:

Übergang: Goniometerkappe-Blendenrohr:

a Kristallhalter
b Kristall
c Blende 5mmØ für Teilchenstrahl
d Drehblende
e Fotozelle
f Lichtstrahl
g Teilchenstrahl
h Blenden für Lichtstrahl
i Blenden für Teilchenstrahl
j Kabelschacht für Versorgungsleitungen
k Blendeneinsätze im Blendenrohr, abwechselnd Pb und Polyaeth.
l Blendenrohr-Übergang zum Goniometerkopf
m Polyaethylenring als Kontakthalterung
n Kontakte für Stromversorgung Goniometerkopf: Nieten
o Spiralfedern zum festen Anpressen der Kontakte
p Markierung(Kerbe) zum Verbinden der richtigen Kontakte
q Anschlag auf Detektorrohr zur reproduzierbaren Montage
r Dichtringe
s Schwenkrichtung des Goniometers

I Profil Goniometerkappe
II Profil Blendenrohr

cherheit und bessere Führung der Kappe beim Aufschieben auf das Rohr bis zum Anschlag. Um die Kappe beim Herausziehen des Geräts aus der Stopfenbohrung nicht zu verlieren, wird das ganze Gerät prinzipiell in evakuiertem Zustand bewegt. Dadurch wird die Kappe mit einer Kraft von ca. 7 kp festgehalten.

Der Druck, auf den das Gerät ausgepumpt wird, ist, genau wie bei der Folienapparatur, ca. $7 \cdot 10^{-2}$ Torr an der Meßstelle. Diese befindet sich außerhalb des Geräts, an dem Vakuumanschlußstutzen.

### 2.3.2 Die Justierung der Kristalle

Bei der Durchführung eines Blocking- oder Channeling-Experiments steht man vor der Aufgabe, die Kristallachse in Richtung der Geräteachse zu justieren, um den interessierenden Winkelbereich gleich zu finden. Dies geschieht hier auf lichtoptischem Wege: Der Winkelbereich ist genau dann gefunden, wenn eine kleine Blende parallel zur Kristallachse einen Lichtstrahl parallel zur Geräteachse durchläßt. Die Begrenzung der Einstellgenauigkeit ist durch die Empfindlichkeit der Fotozelle gegeben sowie durch die technisch realisierbare Leuchtstärke der Lichtquelle bei kleiner, d.h. genauer werdender Blende. Die Durchlässigkeit D einer Zylinder-förmigen Blende gehorcht der Beziehung:

$$D(f) = 1 - \frac{2}{\pi}\,(f \cdot \sqrt{1-f^2} + \arcsin f) \qquad (19a)$$

mit

$$f = \frac{\vartheta L}{2r} \qquad \text{und} \qquad \vartheta \begin{cases} = \psi' - \psi \\ = \text{Winkel zwischen Blendenachse und Untersuchungsrichtung,} \end{cases}$$

L = Länge der Blende, r = Radius der Blende.

D(f) kann angenähert werden durch eine Gerade oder eine Gaußkurve:

$$D(f) \approx 0{,}85(1 - f) \approx a \cdot D_{gauß} \qquad (19b)$$

mit

$$D_{gauß} = (1/s\sqrt{2\pi}) \cdot \exp(-1/2(f/s)^2) \text{ und } a = 0{,}83,\ s = 0{,}35. \qquad (19c)$$

D(s) ist zusammen mit den Näherungen in Abb. 21 dargestellt. Die abgeleitete Formel gilt für parallel einfallende Lichtstrahlen, wird also nur durch eine relativ weit entfernte Lichtquelle realisiert. Es hat sich aber herausgestellt, daß die Einstellgenauigkeit nur unwesentlich schlechter wird, wenn man die Lichtquelle bis auf minimal etwa 7cm an die Blende annähert (bei einer Blende mit r = 0,5 mm und L = 20 mm). Dann ist der Abstand zur Fotozelle so gering, daß als Lichtquelle eine kleine 6 V-Glühbirne mit 4 mm Durchmesser gerade ausreicht. Das hatte zur Folge, daß die optische Winkelkontrolle auch während des Versuchs im evakuierten, in den Reaktor eingebauten Rohr durchgeführt werden konnte. In Abb. 22a) ist die gemessene Durchlässigkeitskurve der theoretischen gegenübergestellt. Die Durchlässigkeit ist in weiten Bereichen fast proportional dem Drehwinkel. Anhand der Symmetrie der Durchlässigkeitskurve läßt sich der Ort des Durchlässigkeitsmaximums, d.h. innerhalb der Genauigkeitsgrenzen die Kristallachse, genau auffinden. Abb. 23 zeigt den Test der Reproduzierbarkeit der Kristalleinstellung bei der optischen Methode. Der Unterschied beider Kurven beträgt ca. $0{,}1^{\circ}$.

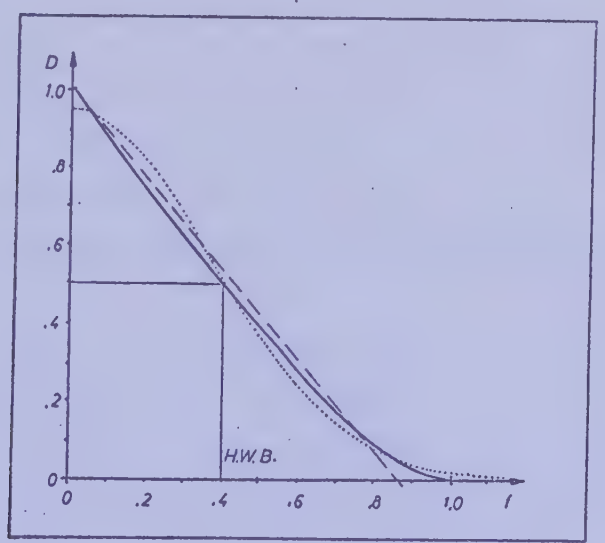
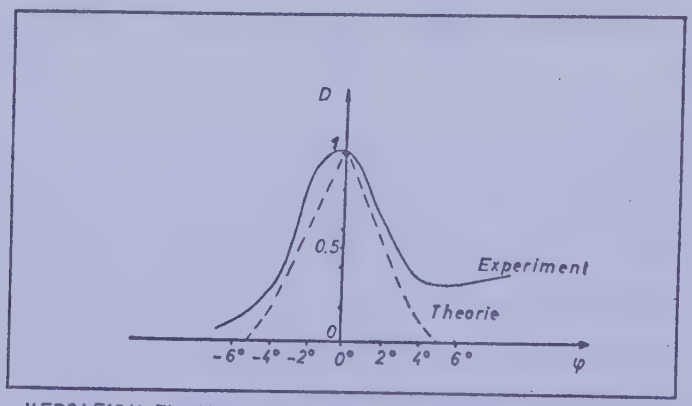



Abb. 21: Die Durchlässigkeit einer Zylinderblende unter verschiedenen Richtungen. D = Durchlässigkeit, $f = \vartheta \cdot L/2r$, L = Blendenlänge, r = Blendendurchmesser, $\vartheta$ = Winkel zwischen Blendenachse und Blickrichtung.

——— = genaue Durchlässigkeitskurve, - - - - = Näherung: Gerade,
····· = Näherung: Gaußkurve.

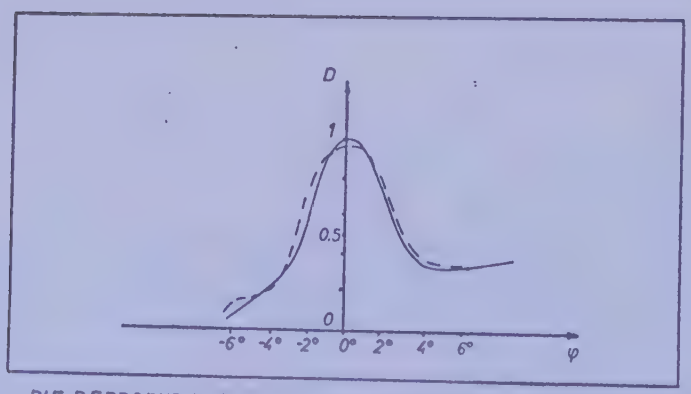
Es wurde auf optischem Wege die Abweichung der Kristallachse von der Blendenachse ermittelt. Sie ist in Abb. 25 dargestellt. Sie beeinträchtigt die Justierung kaum.

Als Fotozelle wurde ein Fotoelement gewählt, da bei diesem der Dunkelstrom Null ist und daher der Untergrund der Justiermessungen sehr klein ist. Nachteilig ist, daß sich im Laufe der Zeit der Glaskörper der Fotoelemente durch Farbzentren-Bildung dunkel färbt und so die Effektivität beeinträchtigt. Die Fotozellen werden daher ab und zu ausgewechselt.




VERGLEICH ZWISCHEN EXPERIMENTELLER UND THEORETISCHER DURCHLÄSSIGKEIT D

Abb. 22




DIE REPRODUZIERBARKEIT DER KURVE D(φ)

Drehblende: L=20mm, r=0.5mm

Abb. 23

Das Goniometer ist nur für eindimensionale Vorwärtsbewegungen konstruiert. Das ist für die hier durchgeführten Versuche ausreichend. Denn zweidimensionale Übersichtsbilder werden mit der Folienapparatur gewonnen. Die Justierung in der zweiten Schwenkrichtung des Kristalls (senkrecht zur Goniometer-Bewegung) erfolgt vor Beginn des eigentlichen Versuchs durch leichtes Verstellen der Lasche, auf der das Goniometer sitzt, und anschließende optische Kontrolle mit der Drehblende. Läßt das Goniometer beim Drehen des Kristallhalters mit der Drehblende kein Licht durch, so ist es in der zweiten Dimension stark verstellt. Ist das Goniometer nur wenig gegenüber der Geräteachse in der zweiten Schwenkrichtung verstellt, so wird beim Durchgang der Blende durch die Achsenrichtung nur ein kleiner Peak des Fotoelement-Stroms registriert. Ist die Anzeige des Fotostrom-Peaks maximal, so hat man genau die Drehblendenachse und damit etwa die Kristallachse gefunden.

Aus dem Intensitätsverhältnis zwischen optimaler Intensitätsverteilungs-Peakhöhe und der jeweils im Versuch gemessenen kann man rückwärts dann auf die jeweiligen Abweichung von der Geräteachse in der 2. Dimension schließen (Abb. 24). Die so erreichbare Genauigkeit der Kristalleinstellung ist etwa $\pm$ 0,2 Grad. Die hier i.a. verwendete Drehblende hat die Abmessungen r = 0,5 mm und L = 10 mm. Wenn man bei einem Experiment erkennt, daß beim Schwenken des Kristalls der Fotostrom plötzlich anzusteigen beginnt, ist man noch 1 - $2^{\circ}$ von der Blocking-Struktur entfernt, so daß man den Dip voll aufnehmen kann.

Nimmt man bei einer Messung mehrere Dips auf, so kann man aus ihren Winkelabständen zueinander gut die Lage des gemessenen Profils im Blocking-Pattern bestimmen. Diese Methode ist eine Ergänzung zu der direkten Justiermethode.

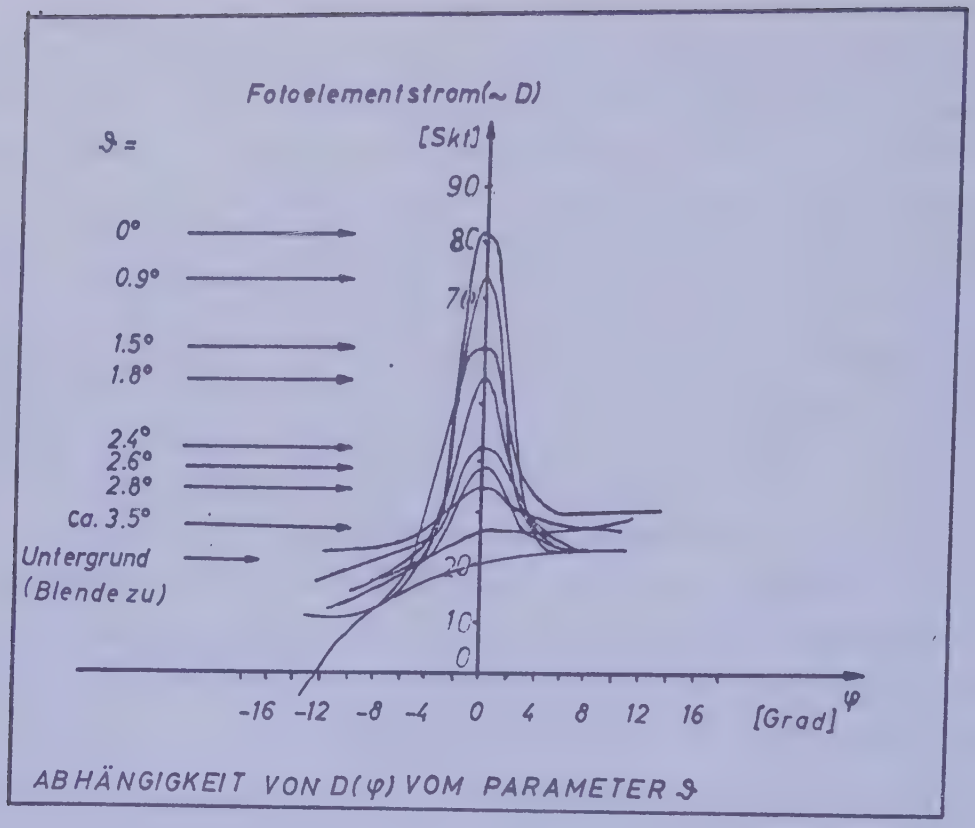

Fotoelementstrom(~ D)
ϑ =
[Skt]
90
80
70
20
10
0
0°
0.9°
1.5°
1.8°
2.4°
2.6°
2.8°
ca. 3.5°
Untergrund
(Blende zu)
-16 -12 -8 -4 0 4 8 12 16 [Grad] φ
ABHÄNGIGKEIT VON D(φ) VOM PARAMETER ϑ

Abb. 24

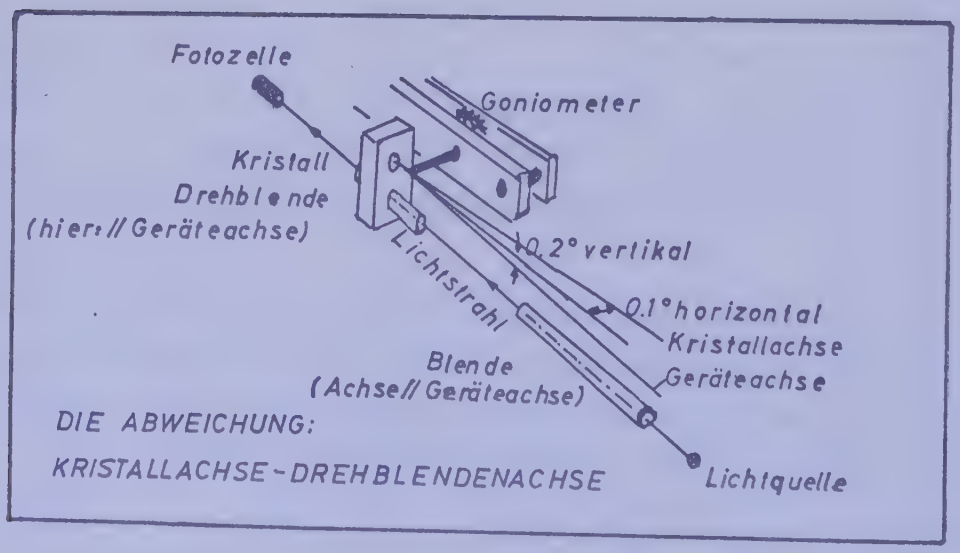

Fotozelle
Goniometer
Kristall
Drehblende
(hier // Geräteachse)
0.2° vertikal
Lichtstrahl
0.1° horizontal
Kristallachse
Geräteachse
Blende
(Achse // Geräteachse)
Lichtquelle
DIE ABWEICHUNG:
KRISTALLACHSE - DREHBLENDENACHSE

Abb. 25

### 2.3.3 Die Teilchenregistrierung

Da die untersuchten Teilchen eine Reichweite von größenordnungsmäßig 10μ in Festkörpern haben, ist ein Halbleiterdetektor mit 100μ Sperrschicht ausreichend. Der Durchmesser des Detektors ist durch die Versuchsgeometrie auf 5 mm Ø festgelegt. Die Auflösung des verwendeten Detektors S1-25-10 der Firma Nuclear Diodes wird mit 25 keV für 5 MeV-α-Teilchen angegeben und zu 29,7 keV für 2 MeV-α-Teilchen bestimmt.

Die von dem Detektor kommenden Impulse werden wie üblich verstärkt und einem Vielkanalanalysator zugeleitet. Nach Beendigung der Messung folgt ein automatischer Ausdruck. Das die Kristallage bestimmende Goniometer wird anschließend vom Vielkanalanalysator aus automatisch oder manuell um einen bestimmten Winkel durch eine vorgebbare Zahl von Impulsen geschwenkt. Die hierzu nötige Zähler-Goniometer-Steuerung wurde zusammen mit dem Sektor E des HMI gebaut. Die Zahl der ans Goniometer abgegebenen Impulse wird gezählt, zur Funktionskontrolle des Goniometers dient ein in den Stromkreis eingebautes Ampèremeter (Abb. 26). Außer der für die Teilchenregistrierung benötigten Elektronik gibt es noch vier Stromkreise für die Vakuummessung, die Temperaturmessung, für Kristalljustierung und die Beleuchtung der Drehblende für die optische Justierung.

Zur Temperaturmessung wurde in die Goniometerkappe ein Thermowiderstand eingebaut, zur Registreierung dessen Widerstandes eine einfache Brückenschaltung verwendet. Die Temperatur in Kristallnähe beim Versuch betrug maximal etwa (40 $\pm$ 5) Grad Celsius.

## 2.4 Die Auflösung

Infolge der endlichen Auflösung der Versuchsapparaturen ist der gemessene Peak (oder Dip) nicht mit dem wahren identisch. Der gemessene ist vielmehr eine Faltung aus dem wahren und der

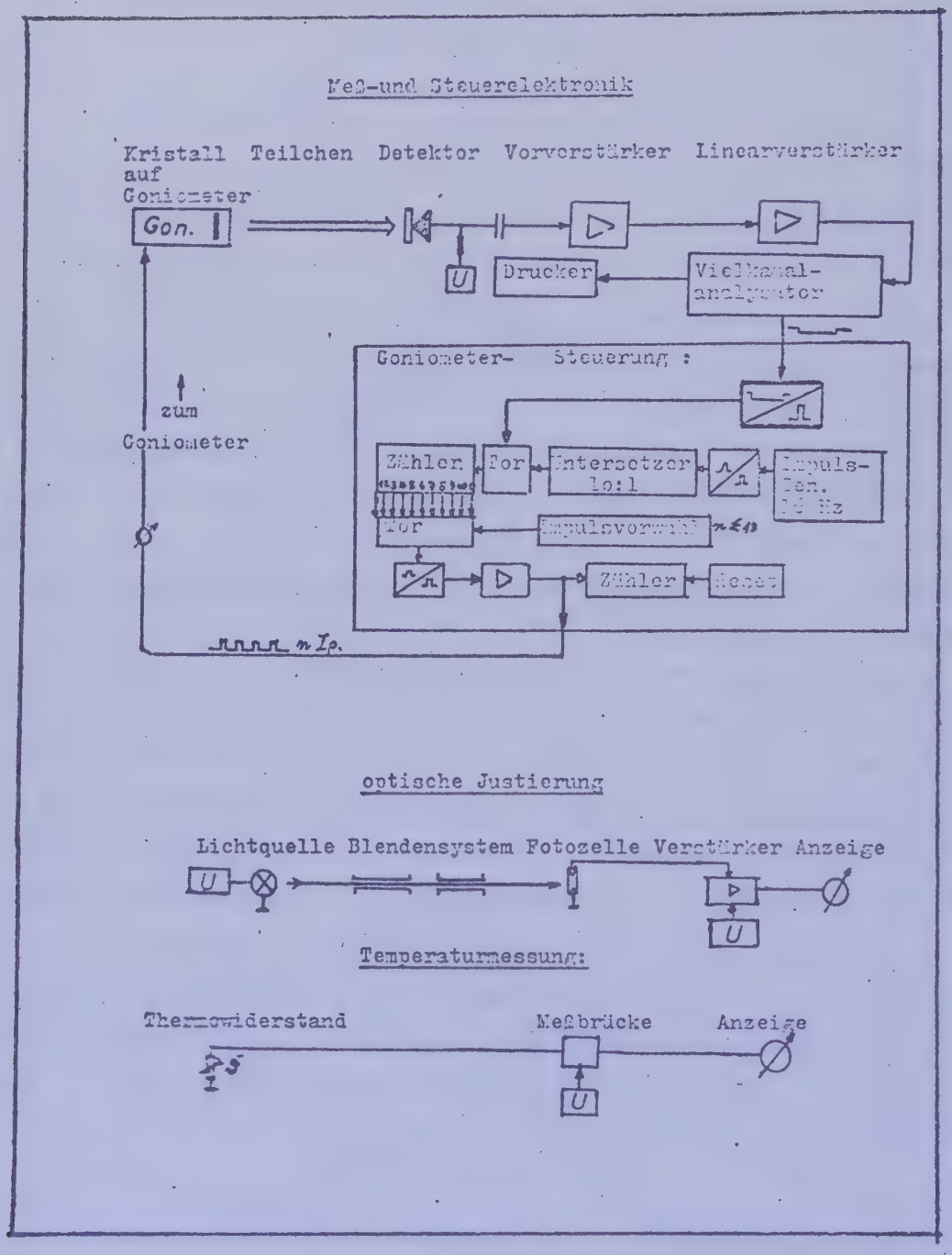



Abb.25 DIE ELEKTRONIK

Auflösungskurve. Um eine einfache numerische Entfaltung bei den Ergebnissen zu erreichen, werden die hier vorkommenden Kurven durch Gaußkurven ersetzt.

$$Z'(\psi) = \int_{-\infty}^{\infty} Z(\psi') \cdot D'(\psi',\psi)\, d\psi' \qquad (20)$$

Z ist die wahre Channeling (Blocking)-Kurve, D' die Auflösung, Z' ist die gemessene Kurve. Die Auflösungskurve $D(\psi,\psi')$ hat für einen kreisförmig ausgeblendeten Detektor die gleiche Form wie die nach Gl. (19c) beschriebene Durchlässigkeitskurve der Zylinderblende.

Bei einer Faltung zweier Gaußkurven sind die Halbwertsbreiten oder Streuungen in einfacher Form miteinander verbunden:

$$\delta\psi^2 = \delta\psi_1^2 + \delta\psi_2^2 \qquad (21)$$

Mit der Streuung ist die Diptiefe gemäß $\chi = 1/\sqrt{\delta\psi^2}$ verbunden.

Während bei der Detektorapparatur selbst schmale Dips naturgetreu gemessen werden können (z.B. planare Dips für 2,7 MeV-Tritium-Blocking in LiF), kann bei der Folienapparatur bei Verwendung größerer Kristalle der Dip bereits merklich aufgefüllt sein.

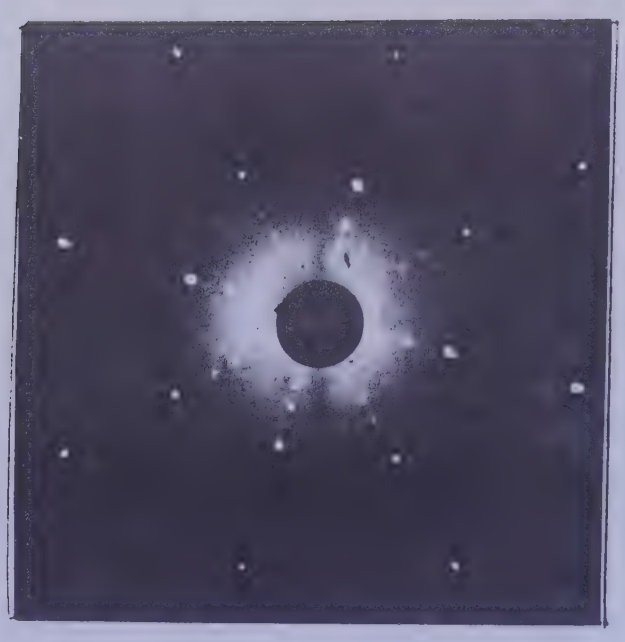
# 3 Die Versuche

## 3.1 Untersuchungen am System LiF

### 3.1.1 Messungen

Die LiF-Kristalle wurden vor Beginn der Messung frisch gespalten. Abb. 27a) zeigt das mit diesen Kristallen aufgenommene Laue-Diagramm.

Es wird die Verteilung der Zählraten in der Umgebung der Achsen <100>, <110>, <111> und (wahrscheinlich) <310> nach der



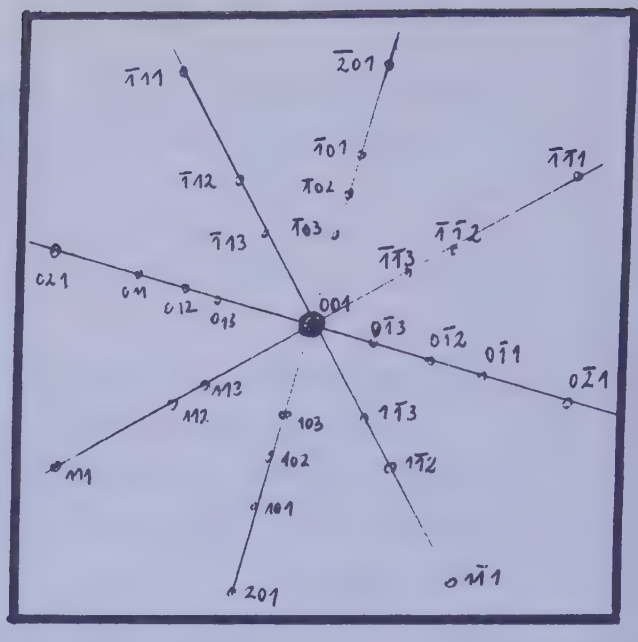



Abb. 27a): Laue-Diagramm von LiF,<100>- Richtung

in 2.3 beschriebenen Folienmethode registriert. Zur Kontrolle der Reproduzierbarkeit des Effektes wurde das Pattern in <100>-Richtung zweimal vermessen. Abb. 28 zeigt die dreidimensionale Darstellung verschiedener Patterns, Abb. 29 die Darstellung mit Linien gleicher Zählrate. Zur Erhöhung der statistischen Genauigkeit wurden einerseits alle identischen Segmente der einzelnen Patterns jeweils einander überlagert, andererseits Mittelungen über konzentrische Kreise um die Achse herum durchgeführt (Abb. 30).

Es wurde versucht, durch Selektrierung von Spuren bestimmter Größe (durch Einstellen bestimmter Schwellwerte bei der Quantimet-Registrierung) zu einer Energiediskriminierung der eingeschossenen Teilchen zu gelangen. Denn der Durchmesser der Ätzgrübchen sollte i.a. mit wachsender Teilchenenergie bis zu einem Schwellenergie-Wert von ca. 5 ... 7 MeV abnehmen. Das bedeutet, daß der größten Schwelle (8) die kleinste Energie ($\approx$ 4 MeV) entspricht.

Die Abb. 31a) zeigt einen {100}-Dip, der für verschiedene Quantimet-Schwellen durchgemessen wurde. Die Halbwertsbreite und Tiefe sind in Abhängigkeit von der eingestellten Schwelle

Abb.23a:

Dreidimensionale Darstellung des Blocking-Pattern von LiF, ⟨100⟩-Richtung. 2.Polienmessung. Auswertung mit Quantimet 72o. Auflösung o,2°.

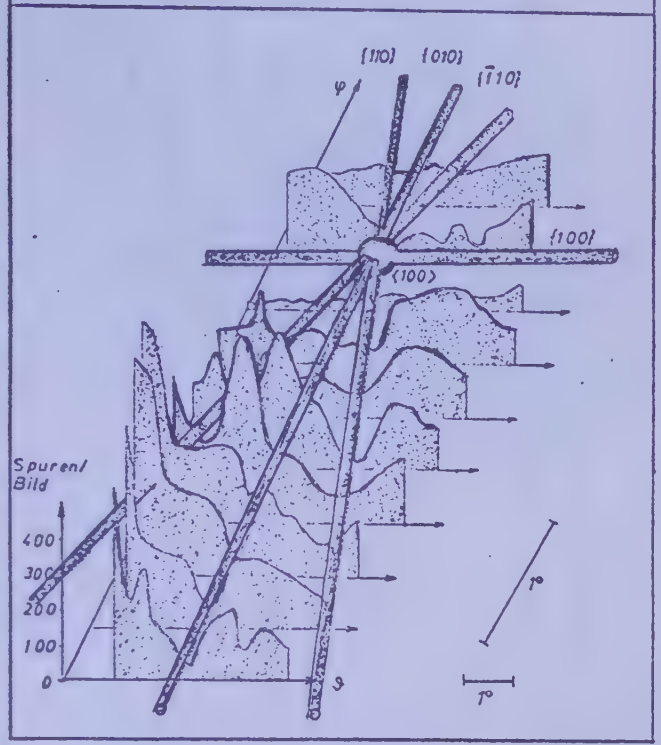



Abb.23b: Dreidimensionale Darstellung des Blocking-Patterns von LiF, ⟨100⟩-Richtung, 1.Polienmessung. Auswertung mit Quantimet B. Auflösung ca. o,35°.

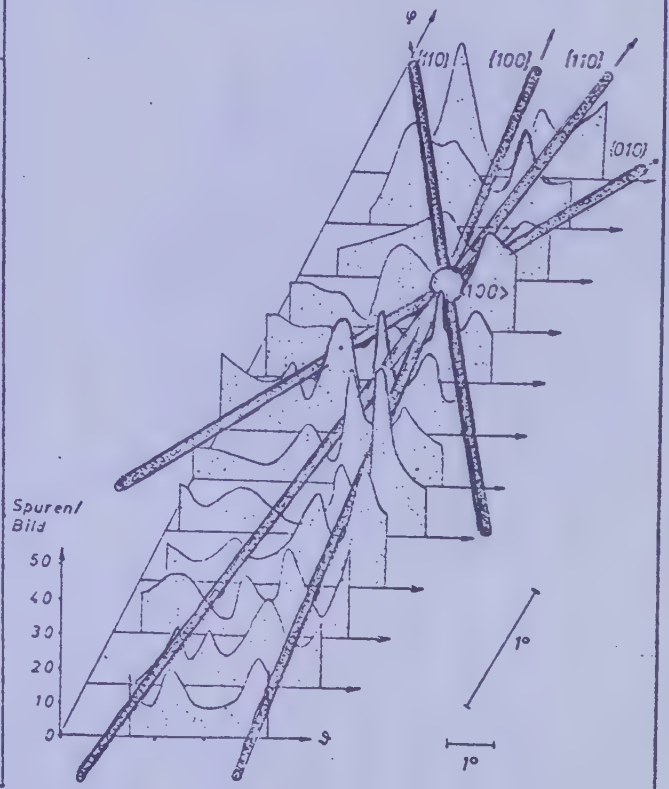
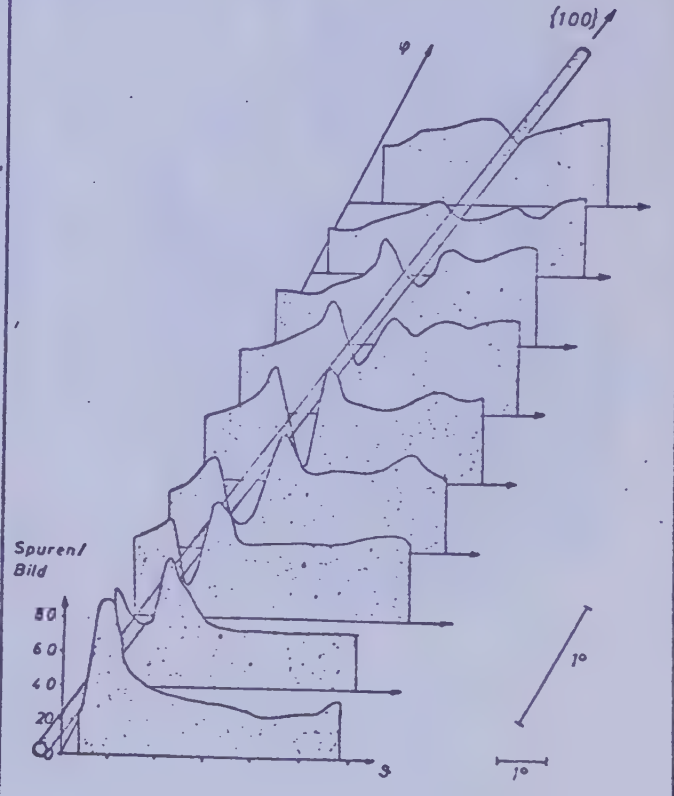



Abb.23c: Dreidimensionales Bild des Blocking-Patterns von LiF, {100}-Ebene nahe der ⟨310⟩- Richtung. Auswertung mit Quantimet 72o. Auflösung ca. 0,2°.



in Abb. 31b) und c) getrennt angegeben. Die Halbwertsbreite ist nahezu unabhängig von der Schwelleneinstellung, die Diptiefe nimmt etwa treppenförmig mit wachsender Schwelle zu. Die erste Stufe (Schwelle 1 - 3) entspricht den T-Atomen, die zweite beiden Reaktionsprodukten zusammen. Die Tiefe des Alpha-Dips unterscheidet sich nach der Theorie nur geringfügig von der des Tritium-Dips, hier treten jedoch recht starke Unterschiede auf. Die Genauigkeit reicht nicht aus, um aus der Steigung der Treppenkurve die Energieabhängigkeit der Diptiefe entnehmen zu können. Innerhalb der hier vorliegenden Fehlergrenzen kann auch die Diptiefe der Tritium- bzw. Alpha-Teilchen als ungefähr energieunabhängig angenommen werden.

Abb. 31d) zeigt die Spurendichte der Folie in Abhängigkeit der Registrationsschwelle, die differenzierte Kurve liefert also die Zahl der Spuren pro Schwellintervall. Diese ist konstant bis auf den Bereich der höchsten Schwelle, d.h. kleinsten Energie. Hier sinkt offensichtlich die Registrationswahrscheinlichkeit der Folie stark. Die beim Energiespektrum (Abb. 2a) gemessenen Feinheiten (Sägezahn-Verlauf) sind hier nicht zu erkennen, ein Beweis dafür, daß die Streuung des Ätzgrübchendurchmessers für Teilchen konstanter Energie recht stark ist. Mit anderen Worten, die Energiediskriminierung läßt sich bei der Folienmessung zwar prinzipiell durchführen, liefert aber äußerst ungenaue Resultate.

Bei allen übrigen Messungen wurden folgende Schwellen eingestellt: untere Schwelle: alle Spuren oberhalb einer für die Erkennung bequemen Mindestgröße werden registriert, obere Schwelle (nur beim Quantimet 720): die größten Spuren werden gerade noch erfaßt.

Die Abb. 32 und 35 und Tabelle 8 zeigen die mit der Detektorapparatur an LiF-Kristallen erhaltenen Ergebnisse. Bei den Kurven ist auch die Lage des Blocking-Profils miteingezeichnet. Die dem jeweiligen Energieintervall entsprechende Emissionstiefe ist in Tabelle 8 angeführt. Die bei Energien unterhalb von 2 MeV aufgenommenen Spektren sind Überlagerungen von Tritium- Alpha-Dips, deshalb kann hier keine eindeutige Tiefenzuordnung mehr erfolgen.

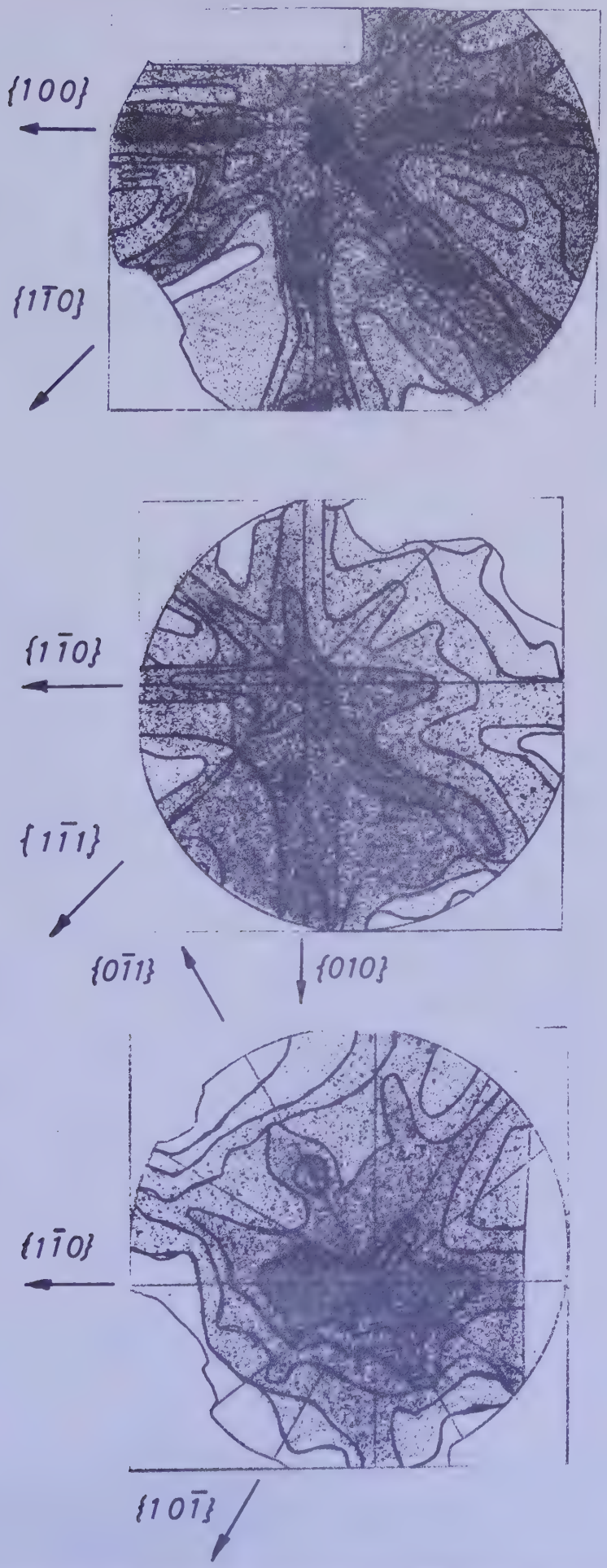
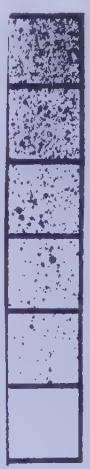



Abb. 29:

Blocking-Pattern von LiF in verschiedenen Richtungen; Diagramm mit Linien gleicher Spurendichte. Auflösung: $0{,}2^{o}$.

Graustufenskala:



0 - 5o

51 -1oo

1o1-15o

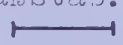
151-2oo

2o1-3oo

3oo-5oo

Spuren/Bild mit Bildgröße= $o{,}236\ mm^2$.

Maßstab:



$1^{o}$

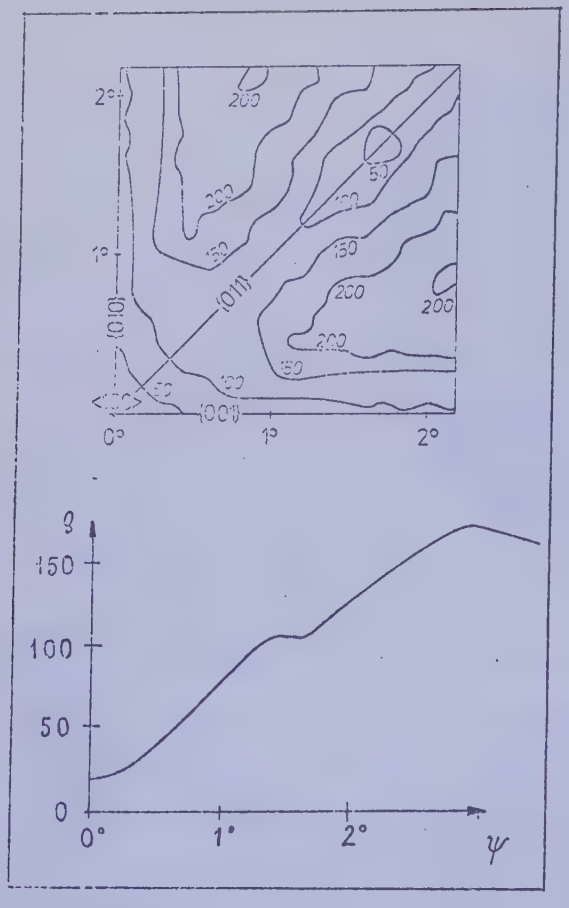



Abb. 30a)

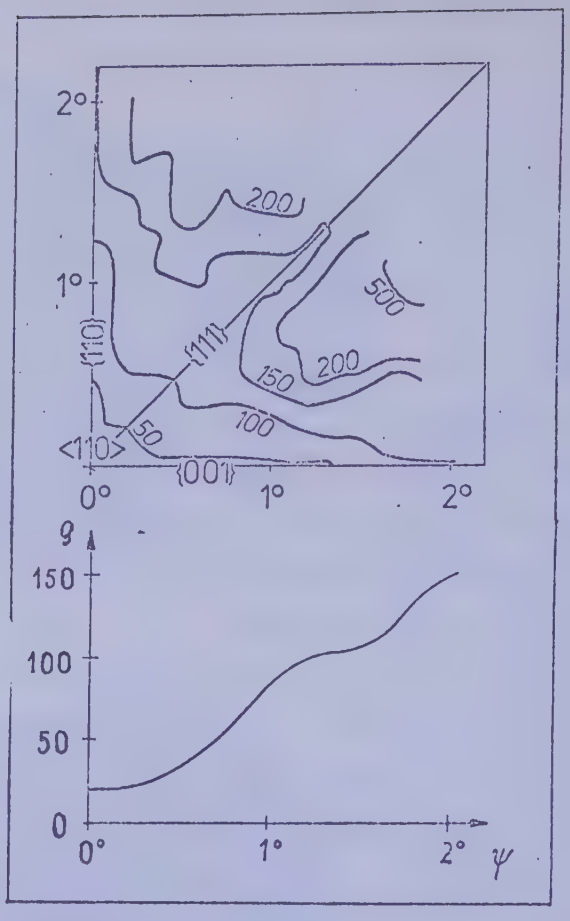



Abb. 30b)

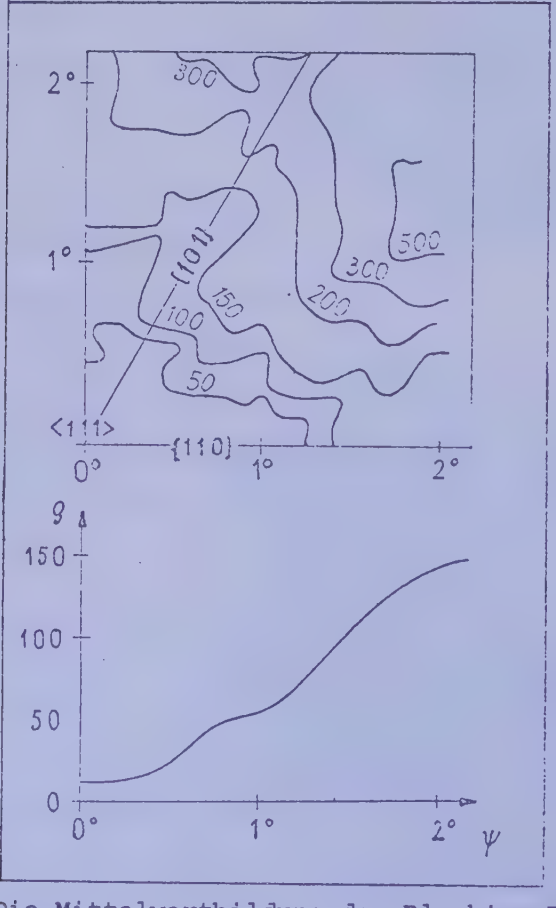
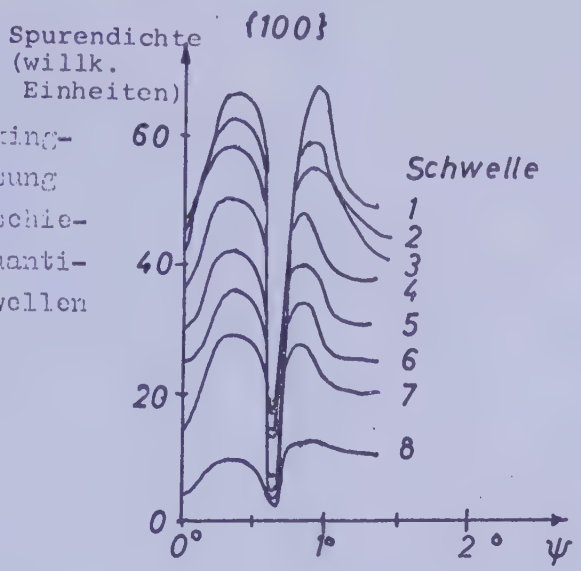


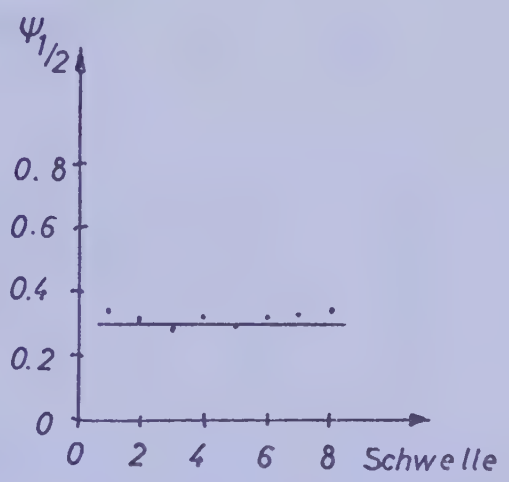

Abb. 30c)

Abb. 30: Die Mittelwertbildung der Blocking-Patterns nach Abb. 27. Mittelung über 8 Segmente bei a); über 4 Segmente bei b) und c). Unter den drei Konturdiagrammen ist die Mittelung über alle Richtungen vom jeweiligen axialen Dip aus eingetragen.

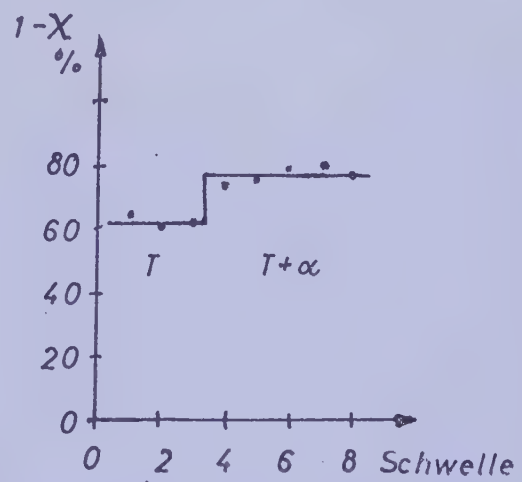
Abb.31: Versuch einer Energiediskriminierung bei Folienmessungen



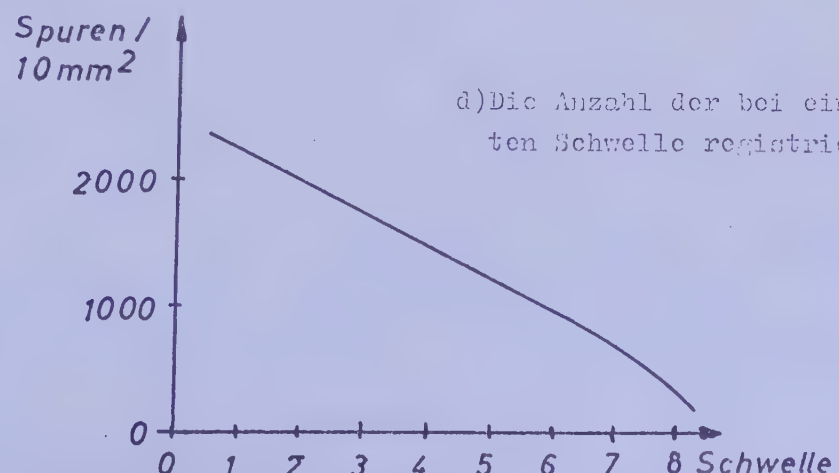

a) Blocking-Dip-Messung bei verschiedenen Quantimet-Schwellen




b) Halbwertsbreite bei verschiedenen Schwell-Einstellungen




c) Diptiefe in Abhängigkeit von der Quantimet-Schwelle




d) Die Anzahl der bei einer bestimmten Schwelle registrierten Spuren

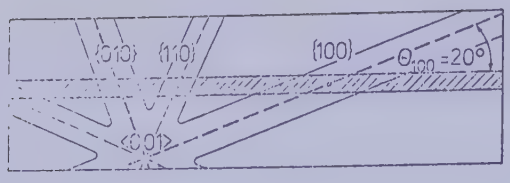



Abb. 32a)

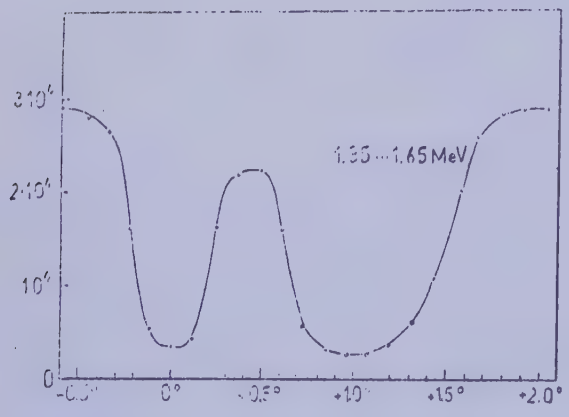



Abb. 32b)

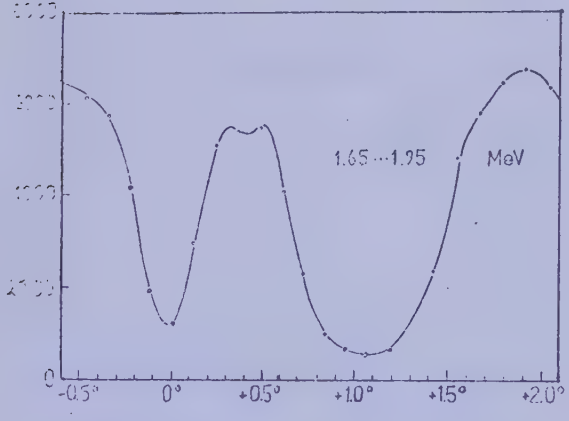



Abb. 32c)

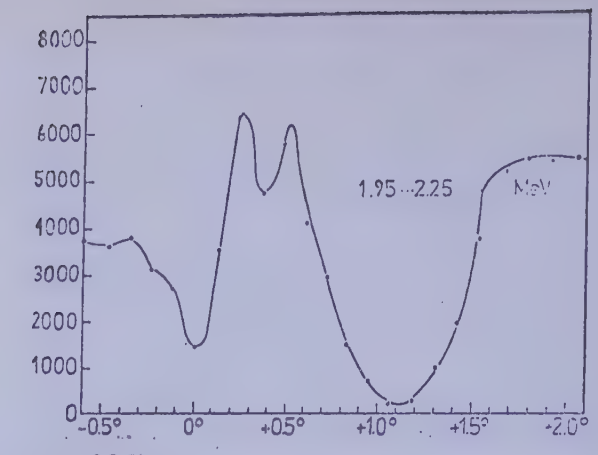



Abb. 32d)

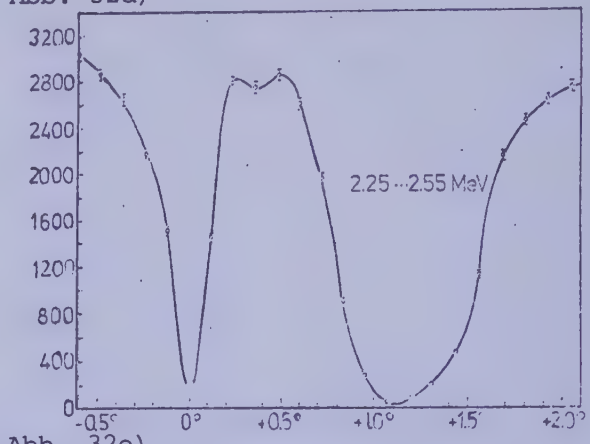



Abb. 32e)

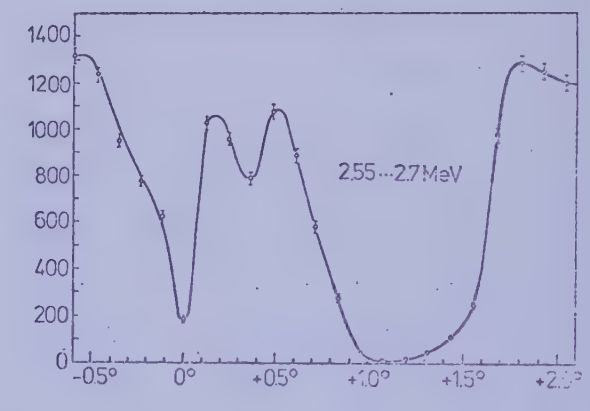



Abb. 32f)

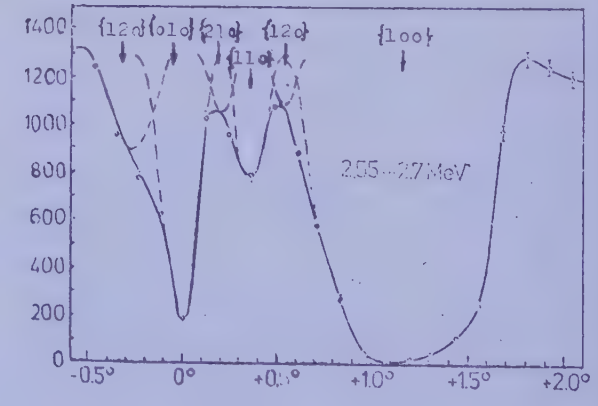



Abb. 32g)

Abb. 32:

Detektormessung an LiF, 2. Versuch (FMRB). Planare Blocking-Dips in <100>-Nähe.

a) Lage des durchmessenen Profils; die abgeschattete Zone gibt den vom Detektor erfaßten Bereich an.
b) bis f) Profile in verschiedenen Energieintervallen.
g) Die Aufspaltung der Dips in höher- und niederindizierte.

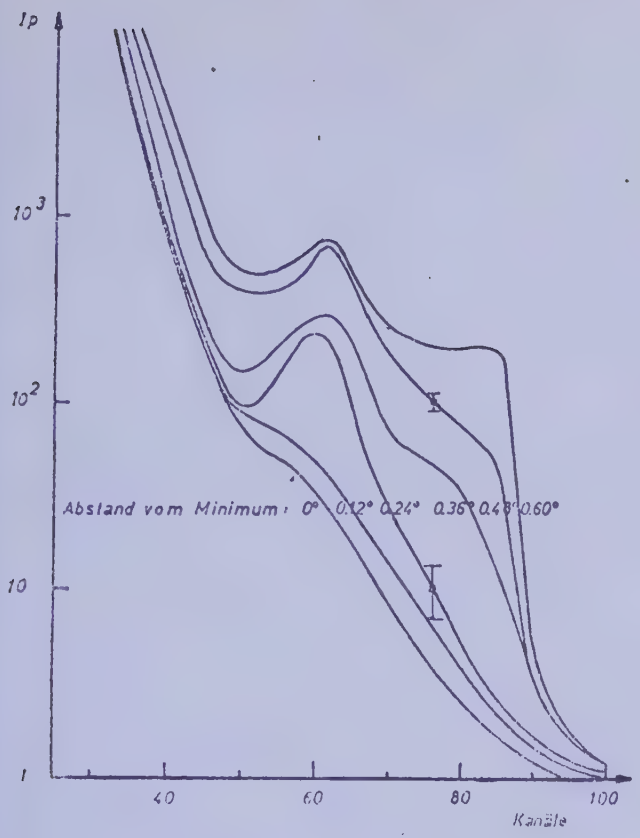



Abb. 33:

Vielkanalerspektren in verschiedenen Winkelabständen vom {100}-Dip.

Abb. 34: Detektormessung an LiF, 3. Versuch (FMRB).
Planare Blocking-Dips in <100> -Nähe.

a) Lage des durchmessenen Profils. Der abgeschattete Bereich gibt das vom Detektor erfaßte Gebiet an.

b) bis e) Profile in verschiedenen Energieintervallen.

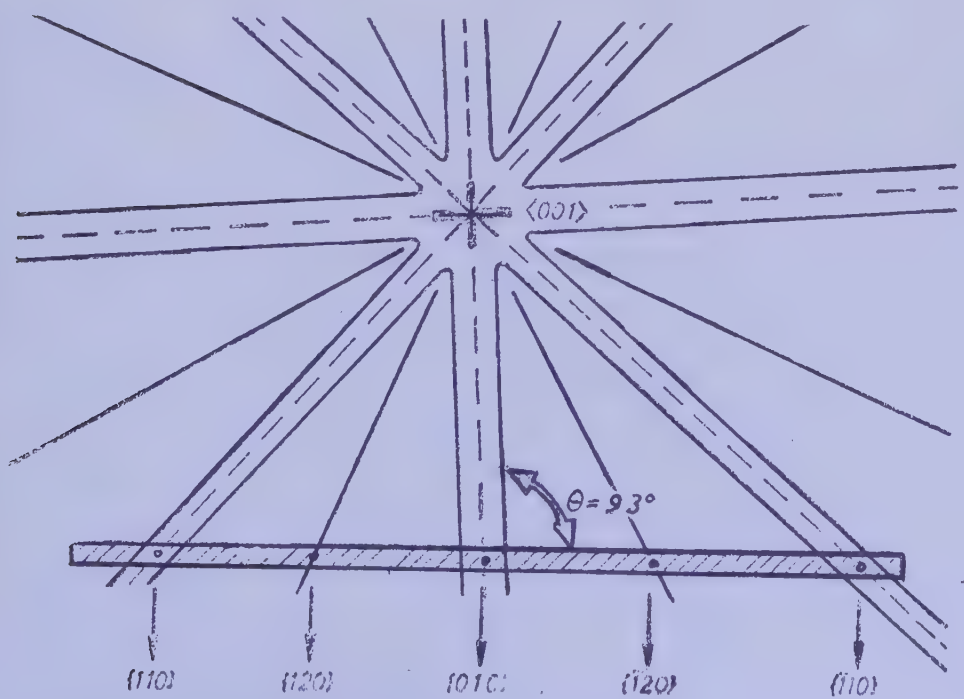



Abb. 34 a)

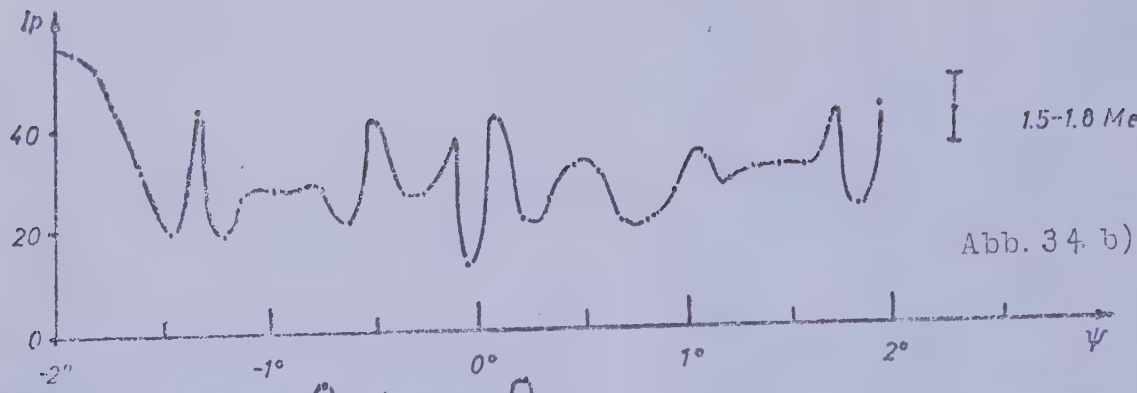



Abb. 34 b)

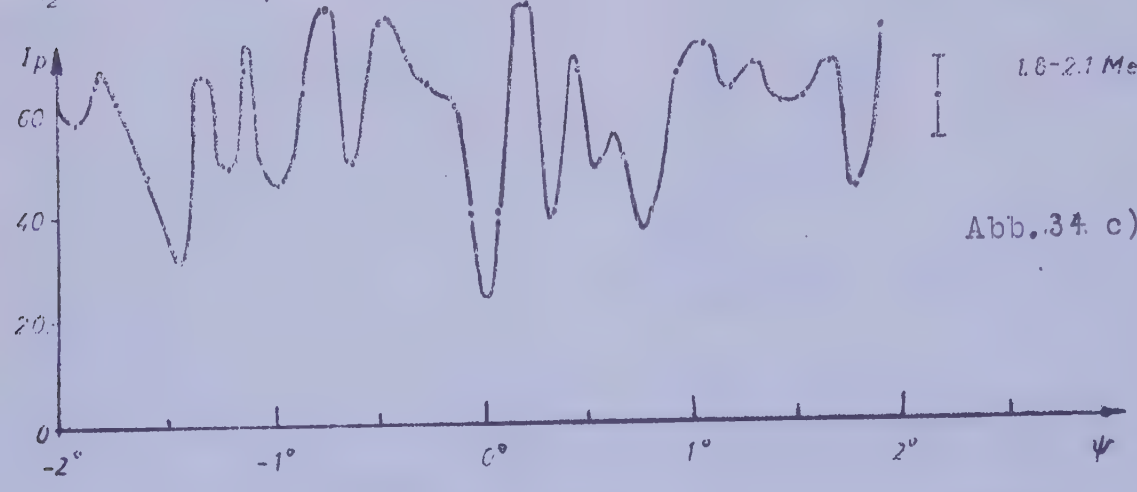



Abb. 34 c)

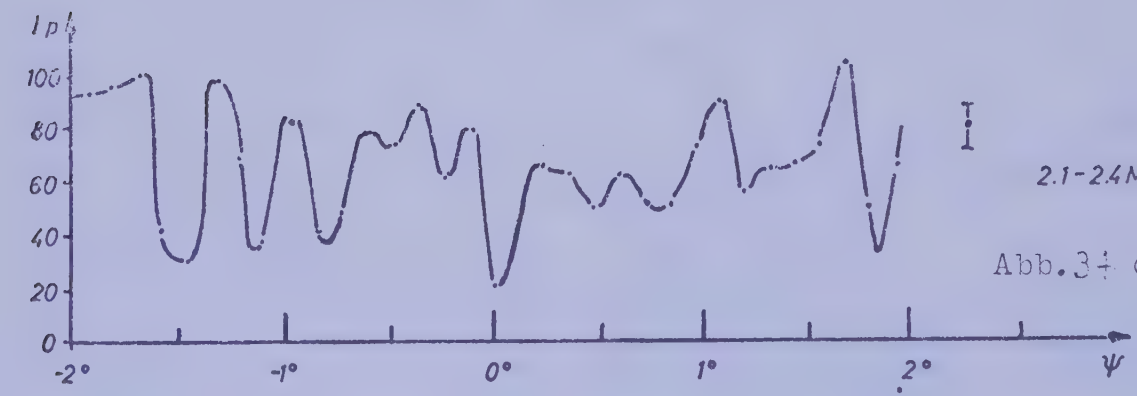



Abb. 34 d)

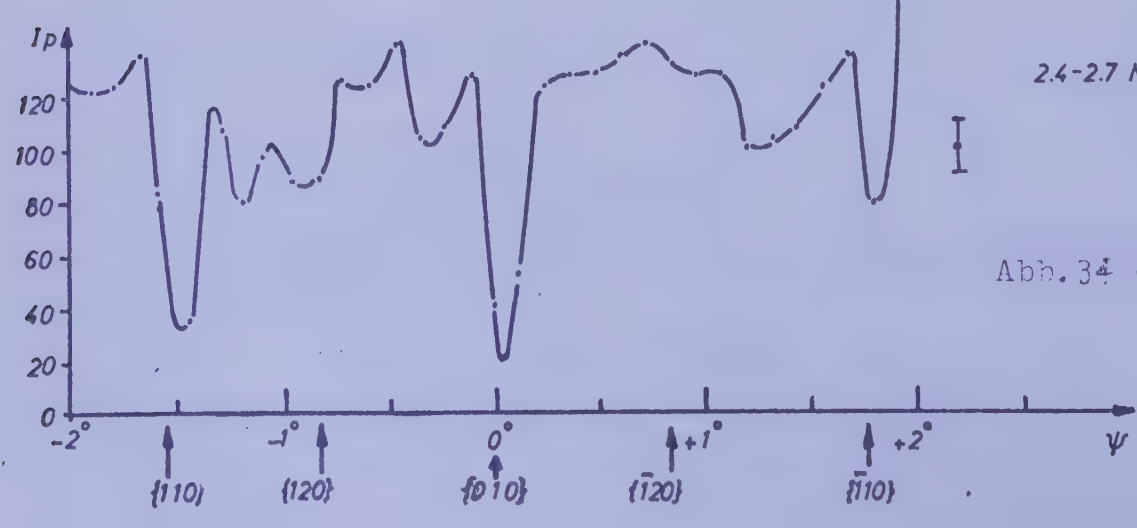



Abb. 34 e)

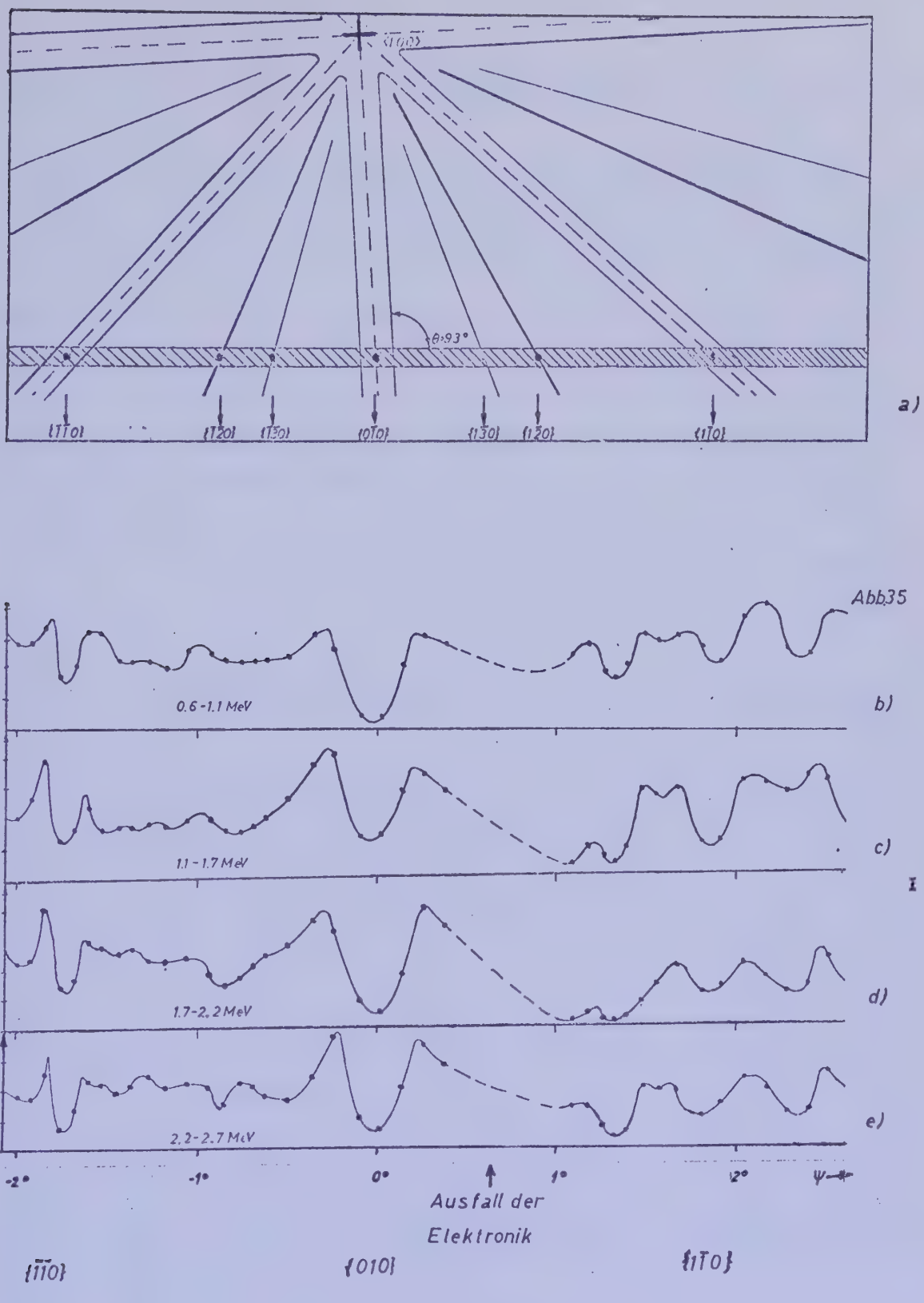



Abb. 35: Detektormessung an LiF, 4. Versuch (FMRB).
Planare Blocking-Dips in <100>-Nähe.

a) Lage des durchmessenen Profils; die abgeschattete Zone gibt den vom Detektor erfaßten Bereich an.
b) bis e) Profile in verschiedenen Energieintervallen.

### 3.1.2 Auswertung und Diskussion

Bei den Folienmessungen nach Abb. 30 fällt auf, daß die planaren Dips von den benachbarten axialen durch kleine Schwellen getrennt sind. Dieser Effekt ist auf eine schwache Potentialbarriere zwischen den axialen und planaren Kanälen zurückzuführen.

Die Form der axialen Dips nach Mittelung über alle Richtungen zeigt eine Treppenstruktur. Sie ist auf die Plateaus zwischen den planaren Richtungen zurückzuführen, wie man aus den Konturdiagrammen erkennen kann. Wird anstelle der Mittelung über alle Richtungen ein Profil durch einen axialen Dip längs einer willkürlichen nicht niedrig indizierten Richtung gelegt, so verschwindet die Treppenstruktur und die Kurve steigt vom Minimum steil bis zu einer hohen Schulter am Bildrand an.

Tabelle 8a): Ergebnisse der Folienmessung für LiF (nicht entfaltet).

| Richtung | halbe Dipbreiten [Grad] Halbwerts-breite | Zentrum-Schulter | Diptiefen [%] |
|---|---|---|---|
| ⟨1oo⟩ | o,7 | 1,4 | 1o |
| ⟨11o⟩ | o,7 | 1,3 | 14 |
| ⟨111⟩ | o,6 | o,8 | 1o |
| {1oo} | o,2 | o,2 | 3o |
| {11o} | o,2 | o,2 | 4o |
| {111} | o,2 | o,2 | 5o |
| Genauigkeit | ±o,2 | ±o,2 | ± 3 (Achsen) |
| | ±o,1 | ±o,1 | ±1o (Ebenen) |

Tabelle 8b) Ergebnisse der Detektormessungen für LiF (nicht entfaltet).

| E [MeV] | Tiefe T [μ] | α | $\psi_{bl}$ bzw. $\phi_{bl}$ Grad | | | Diptiefe [%] | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1. Versuch: | | | <100> | | | | | |
| 2,7-2,3 | 0-10 | | 0,6 | | | | 80 | |
| 2,3-2,0 | 10-17 | | 0,4 | | ±0,2 | | 50 | ± 10 |
| 1,5-2,0 | 17-25 | 0-10 | 0,5 | | | | 80 | |
| 2. Versuch: | | | {010} | {110} | {100} | {010} | {110} | {100} |
| 2,73-2,55 | 0-4 | | 0,10 | 0,08 | 0,16 | 16 | 74 | 1,0 |
| 2,55-2,25 | 4-11 | | 0,12 | 0,07 | 0,14 | 7 | 97 | 1,5 |
| 2,25-1,95 | 11-17 | 0-1 | 0,13 | 0,07 | 0,13 | 26 | 76 | 3,5 |
| 1,95-1,65 | 17-23 | 1-7 | 0,18 | 0,05 | 0,15 | 19 | 96 | 9 |
| 1,65-1,35 | 23-27 | 7-12 | 0,22 | - ±0,05 | 0,16 | 12 | 100 ± 5 | 9 |
| 3. Versuch: | | | {110} | {010} | {110} | {110} | {010} | {110} |
| 2,7-2,4 | 0-7 | | 0,07 | 0,09 | 0,06 | 25 | 16 | 52 |
| 2,4-2,1 | 7-14 | | 0,08 | 0,10 | 0,07 | 30 | 25 | 30 |
| 2,1-1,8 | 14-20 | 0-3 | 0,12 | 0,09 | 0,06 | 31 | 31 | 63 |
| 1,8-1,5 | 20-25 | 3-9 | 0,12 ±0,05 | 0,06 | 0,08 | 47 | 32 ± 7 | 88 |
| 4. Versuch: | | | $\{\bar{1}10\}$ | $\{0\bar{1}0\}$ | $\{1\bar{1}0\}$ | $\{\bar{1}\bar{1}0\}$ | $\{0\bar{1}0\}$ | $\{1\bar{1}0\}$ |
| 2,7-2,2 | 0-12 | | 0,07 | 0,15 | 0,14 | 21 | 16 | 48 |
| 2,2-1,7 | 12-24 | 0-8 | 0,07 | 0,15 | 0,12 | 37 | 13 | 50 |
| 1,7-1,1 | 24-30 | 8-17 | 0,07 | 0,15 | 0,12 | 37 | 30 | 31 |
| 1,1-0,6 | 30-39 | 17-26 | 0,05 | 0,16 | 0,10 | 43 | 9 | 59 |

Tabelle 8c) Zusammenfassung (entfalteter) Detektormessungen an LiF

| Richtung | Energie [MeV] | Teilchen | gemittelte halbe Halbwertsbreite | Diptiefe |
|---|---|---|---|---|
| {100} | 2,7-2,0 | T | 0,12° | 11% |
| | ≤2,0 | T+α | 0,14° | 17% |
| {110} | 2,7-2,0 | T | 0,08° | 47% |
| | ≤2,0 | T+α | 0,09° | 47% |

Die Ergebnisse der Detektormessungen fallen durch ihre geringe Halbwertsbreite und, insbesondere bei Abb. 32a)-f) durch ihre große Tiefe auf; die Deutung ist unklar. Der {010}-Dip des LiF in Abb. 33 weist eine flache linke Flanke auf, die durch Überlagerung des {010}-Dips mit dem {1$\bar{2}$0}-Dip zu erklären ist. Die {210} und {120}-Dips sind allerdings wesentlich schwächer ausgeprägt.

Die Entfaltung beeinflußt die Dips in der Weise, daß die ohnehin kleinen Halbwertsbreiten noch schmaler werden und die Diptiefe weiter sinkt.

Die Halbwertsbreite ist im Rahmen der Meßgenauigkeit etwa unabhängig von der Austrittsenergie, d.h. Starttiefe, bis hinunter zu 2,0 MeV. Darunter wird sie wegen der zusätzlich registrierten α-Teilchen etwas breiter. Es wurde beobachtet, daß die Dips nach längerer Meßdauer (durch Strahlenschäden) allmählich aufgefüllt wurden (Abb. 33, 34, Messung von links nach rechts, Auffüllung der Dips nach zweiwöchigem Versuch um ca. das 1,5fache des Ausgangswerts).

Amberger [46] führte am System LiF eine Channeling-Messung mit α-Teilchen durch. Nach der Lindhard-Formel (12) können seine Messungen mit den hier vorliegenden verglichen werden und so

die Gültigkeit der Reversibilitätsregel überprüft werden (Tabelle 9). Die axialen Meßergebnisse sind, auf verallgemeinerte Koordinaten bezogen, in Abb. 36 dargestellt. Sie liegen etwas höher als die theoretischen Erwartungen und bisherige Meßergebnisse, was wahrscheinlich darauf zurückzuführen ist, daß die Folien stärker auf die Reaktionsprodukte höherer Ordnungszahl ansprechen (die Umrechnung in verallgemeinerte Koordinaten wurde unter der Voraussetzung gleicher Registrierwahrscheinlichkeit für Alphas und Tritonen durchgeführt). Berücksichtigt man nur die Alpha-Teilchen, so liegen die Meßwerte gut im Bereich bisheriger Messungen. Dasselbe gilt auch für die anderen, in den folgenden Abschnitten beschriebenen Kristalle (mit Ausnahme von Ge(Li)).

Tabelle 9: Gegenüberstellung experimenteller Ergebnisse:
a) Ergebnisse des Amberger-Experiments [46]
(8,79 MeV α-Teilchen in LiF, Channeling)
b) Umrechnung auf Blocking mit 2,0 MeV-α-Teilchen in LiF,
Vergleich mit eigenen Messungen an LiF und Li-dotiertem Nb.

| Richtung | $\psi_c^o$ experimentell (Amberger) |
|---|---|
| <100> | $0{,}59 \pm 0{,}05$ |
| <110> | $0{,}29 \pm 0{,}05$ |
| <111> | $0{,}03 \pm 0{,}05$ |

a)

| Richtung | halbe Halbwertsbreite, 2MeV-α in LiF | | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | theoret. mit Temp.-Abhängigkeit LiF | Amberger LiF umgerechnet | eigene Messungen an LiF Folie | Detektor | Nb(Li) auf LiF umgerechnet |
| <100> | $0{,}70^o$ | $1{,}75^o$ | $0{,}7^o$ | $0{,}6^o$ | $0{,}5^o$ |
| <110> | $0{,}38^o$ | $0{,}86^o$ | $0{,}7^o$ | | |
| <111> | $0{,}56^o$ | $0{,}89^o$ | $0{,}6^o$ | | |
| | | $\pm 0{,}1^o$ | $\pm 0{,}2^o$ | $\pm 0{,}2^o$ | $\pm 0{,}2^o$ |

b)

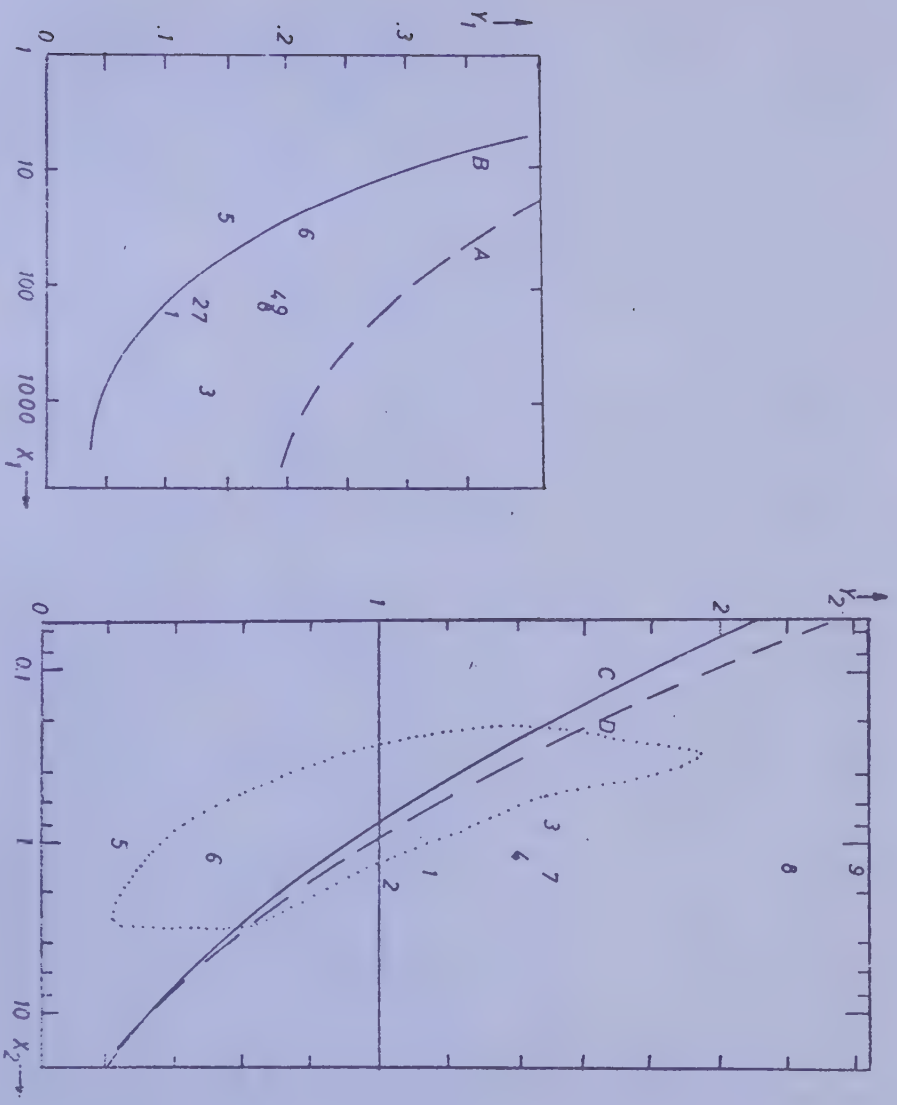



Abb. 36: Darstellung aller axialen Meßwerte in verallgemeinerten Koordinaten nach Biersack; Formeln (13) und (14).

Erklärung der Zahlen:

1: Messung an LiF,⟨100⟩, mit Detektor

2: Messung an LiF,⟨100⟩, mit Folie

3: Messung an LiF,⟨110⟩, mit Folie

4: Messung an LiF,⟨111⟩, mit Folie

5: Messung an Ge(Li),⟨111⟩, Folie

6: Messung an Nb(Li),⟨111⟩, Folie

7: Messung an Kernit,⟨010⟩, Folie

8: Messung an B ,⟨111⟩, Folie

9: Messung an $B_4C$,⟨111⟩, Folie.

Erklärung der Kurven:

A: Theoretische Erwartung nach Varelas u.Biersack[26]

B: Theoretische Erwartung nach Lindhard[25]

C: Berechnung von Biersack mit Thomas-Fermi-Potential[45]

D: Berechnung von Biersack mit Standardpotential [45]

gepunktete Umrandung: Bereich früherer Meßergebnisse[45].

Die Folienmessungen mitteln die Halbwertsbreiten beider Reaktionsprodukte. Die vorliegenden Meßpunkte sind unter der Annahme völliger Gleichwertigkeit beider Produkte für die Folienregistrierung umgerechnet worden.Die Abweichung vor allem der borhaltigen Proben von der theoretischen Erwartung zeigt, daß die Folie bevorzugt die schwereren Reaktionspartner registriert.

## 3.2 Untersuchungen am System Ge(Li)

Eine dünne Scheibe Germanium wurde mit Li oberflächlich bedeckt und auf 500°C in Ar-Schutzgas mehrere Stunden lang erhitzt. Währenddessen diffundiert das Li in das Ge bis zur Sättigungskonzentration (ca. $2,5 \cdot 10^{-5}$ [20]) hinein. Danach wurde die Probe auf Zimmertemperatur abgekühlt, oberflächlich geschliffen, geätzt und gesäubert.

Wegen der sehr hohen Diffusionskonstante von Li in Ge ist die Dotierung im Germaniumkristall homogen verteilt. Eine Detektormessung erbrachte daher ein Spektrum der Form nach Abb. 2a). Beim Abkühlen auf Zimmertemperatur geht die Löslichkeit des Li in Ge auf unter $10^{-9}$ zurück [20], es ist bislang unbekannt, welche Plätze die Li-Atome im Ge-Gitter nach Überschreiten der maximalen Löslichkeit einnehmen (normalerweise sitzen die Li-Dotierungen im Ge-Gitter auf Zwischengitterplätzen). Deshalb ist hier ein Channeling/Blocking-Experiment von Interesse.

Abb. 37 zeigt das Ergebnis eines Folienexperiments an Ge(Li), ein weiteres Experiment erbrachte ein ähnliches Resultat. Deutlich sind axiale und planare Dips um die <111>-Achse herum zu sehen, die Halbwertsbreite der Strukturen ist nur etwas kleiner als nach der Theorie vorhergesagt wird, Tab. 10. Allerdings sind die Dips wesentlich stärker aufgefüllt als erwartet; dies liegt daran, daß in diesem Versuch die Sättigungskonzentration stark überschritten wurde. Ein großer Teil des Li sitzt daher nicht exakt auf Zwischengitterplätzen und bewirkt infolgedessen die Auffüllung und Verschmälerung der Dips. (Ähnliche Untersuchungen wurden von Akasaka und Horie [47] an Bor in Silicium vorgenommen (100 keV B in Si, Untersuchung mit $^{11}B(p,\alpha)^{8}Be$-Reaktion); sie erhielten das Ergebnis, daß sich Bor-Implantate bei hohen Konzentrationen (> Sättigung) längs {110}-Ketten mit einer vom Wirtsgitter etwas differierenden Gitterkonstante ausscheiden. Das Ergebnis ist ein Rückgang der relativen Dip-Ausbeute für <111> bis auf max. 100%, den Wert für amorphe Targets.)

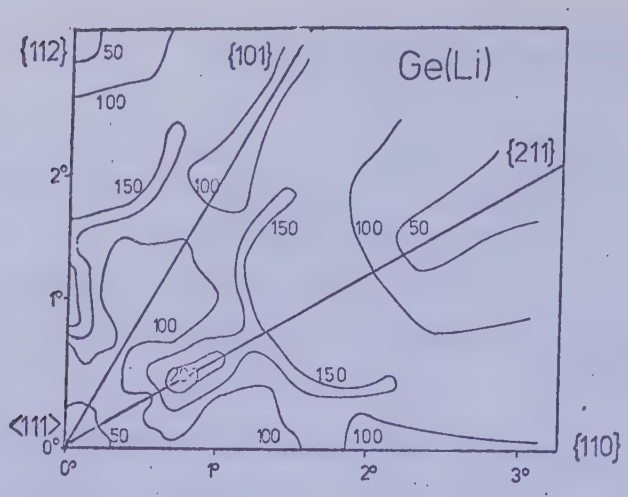



Abb. 37: Blocking-Pattern der aus Ge(Li) in <111>-Richtung emittierten Teilchen, aufgenommen mit Cellulose-Acetat-Folie, gemittelt über 12 gleiche Sektoren. Größe des Meßfeldes wie Abb. 29.

Tabelle 10: Ergebnisse des Blocking-Experiments an Ge(Li) (ohne Entfaltung), theoretische Vorhersagen in Tabelle 7.

| kristallogr. Richtung | Blocking-Winkel (volle HWB) | relative Ausbeute % |
|---|---|---|
| <111> | 0,5° | 26 |
| {110} | 0,2° | 66 |
| {211} | 0,2° | 51 |

## 3.3 Untersuchungen am System Nb(Li)

Die Präparation der Niob-Einkristall-Proben wurde bereits oben (Tab. 3, Kapitel A 2.2) beschrieben. Ein Folienexperiment erbrachte ein Channeling-Pattern nach Abb. 38. Das ist konsistent mit Li-Atomen auf Zwischengitterplätzen. Da bislang nur

eine Kristallrichtung, <111> , untersucht wurde, ist eine Untersuchung zwischen oktahedrischen und tetrahedrischen Plätzen noch nicht möglich.

Da die Li-Atome durch Implantation in das Niob-Gitter eingebracht wurden, sitzen sie infolge von Strahlenschäden im Niob nicht alle auf Zwischengitterplätzen. Dies erklärt das relativ schlechte Verhältnis zwischen Peak und Untergrund, 150 : 50. Die Existenz von Strahlenschäden durch Implantation wurde auch in einem Rückstreuexperiment nachgewiesen: Es wurden 300 keV $H^+$-Ionen auf verschiedene Stellen der Niob-Probe geschossen, und ihr Rückstreuspektrum wurde als Funktion des Einfallwinkels bzgl. des <111>-Dips längs der {110}-Ebene gemessen. Es ergab sich eine größere Diptiefe des daraus gewonnenen Blocking-Patters für unbestrahlte (43%) - bezogen auf Rückstreuintensität im {110}-Kanal - als für vorher mit $^6Li$ bestrahlte Gebiete (66%) - bezogen auf Rückstreuintensität im {110}-Kanal -, Abb. 39.

Ein anderer Niob-Kristall wurde nach der Implantation erst 30 min lang bei 1000°C ausgeheizt und dann mit 300 keV $H^+$ wie zuvor untersucht. Die Diptiefe ist hier bei Li-implantierten Zonen und ungestörten Gebieten innerhalb der Fehlergrenze dieselbe, d.h. die Strahlenschäden sind hier zum großen Teil bereits ausgeheilt.

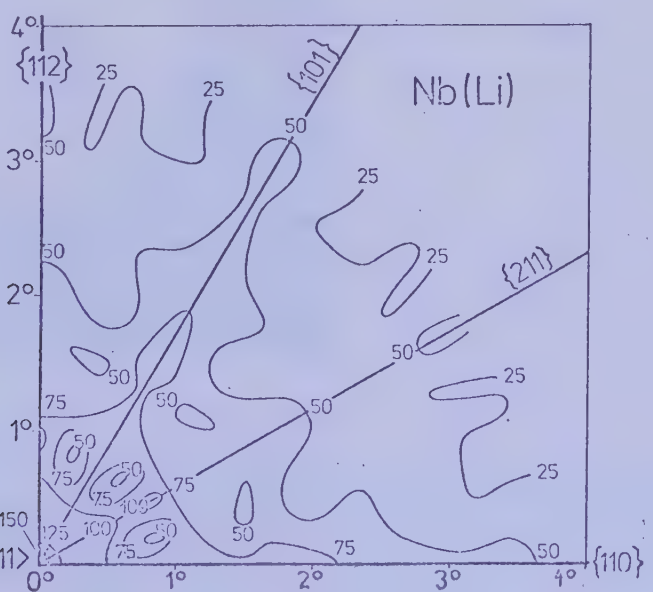



Abb. 38: Channeling-Pattern von Nb(Li), gemittelt über 12 gleiche Sektoren. Größe des Meßfeldes wie bei Abb. 29.

Tabelle 11: Resultate des Channeling-Experiments an Nb(Li).

| kristallogr. Richtung | Blocking-Winkel | Verhältnis +) Peak-Untergrund |
|---|---|---|
| ⟨111⟩ | 0,5° | 3,0 |
| {110} | 0,4° | 2,0 |

+) Untergrund ca.50 Spuren pro Meßfeld(0,236 $mm^2$)

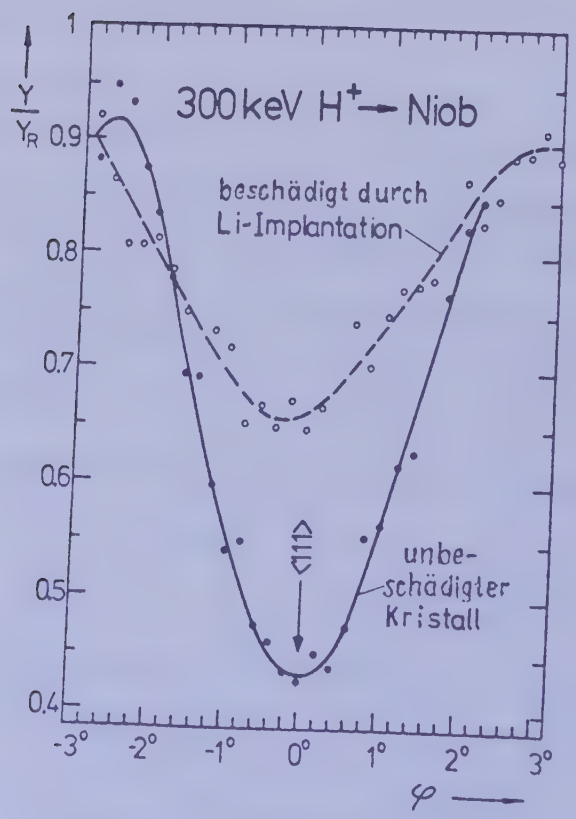



Abb. 39: Rückstreumessung von 300 keV $H^+$ an Nb(Li), Messung von Li-beschossenen Gebieten mit Strahlenschäden und Li-freien Gebieten ohne Schäden des Gitters. Messung längs {110}-Ebene durch <111>-Achse.

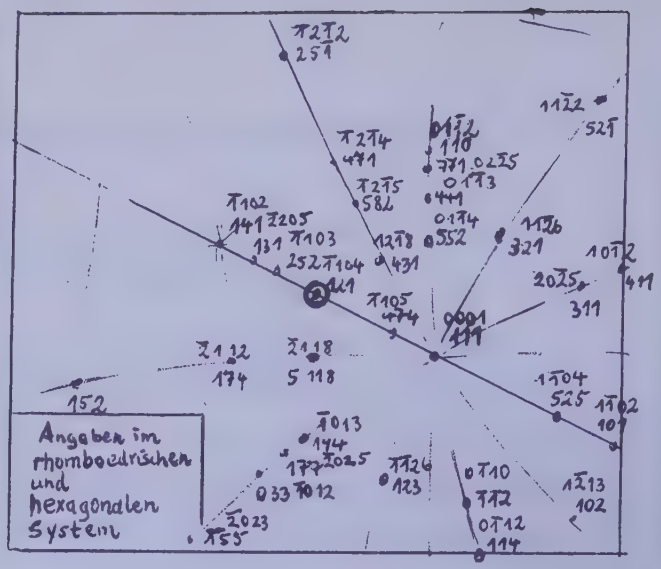
## 3.4 Untersuchungen an borhaltigen Kristallen

Die $^{10}B(n,\alpha)^{7}$-Reaktion wurde zur Untersuchung von Kernit, Bor und Borcarbid angewendet.

Kernit, $Na_3B_4O_7 \cdot 4\,H_2O$ (Borgehalt 3%), ist ein Mineral niedriger Symmetrie (monoklin-prismatisch) und komplizierter Basis (104 Atome pro Einheitszelle), welches in großen gut gewachsenen Kristallen erhältlich ist. Abb. 27b) zeigt das Laue-Diagramm von Kernit. Die frisch gespaltenen Kristalle müssen sofort gemessen werden, da ihre Oberfläche schnell verwittert. Abb. 40 zeigt das erhaltene Blocking-Pattern. Es ist ein ausgeprägter <010>-Dip vorhanden, das Pattern spiegelt gut die monokline Gitterstruktur mit einem Winkel von 108° zwischen {100} und {001} wider. Die Halbwertsbreite des <010>-Dips stimmt gut mit der Theorie überein, Tabelle 12. Schwächer auftretende planare Strukturen können nur schlecht durch höher indizierte Ebenen gedeutet werden.

Abb. 27b):
Laue-Aufnahme von Kernit (auf Spaltfläche {010} geklebt).

Ein Boreinkristallstab wurde mit einer Diamant-Trennsäge in 1mm dicke Scheiben geschnitten und anschließend nach [48] mit eine Mischung von 70 Gew.-% $H_2O$, 22 Gew.% $K_3Fe(CN)_6$, 8 Gew.-% KOH bei 95°C angeätzt. Vor dem Anätzen wurde mit Aceton gespült, nach dem Ätzen mit dest. Wasser und abs. Alkohol. Die Borkristalle weisen eine Zwillingsbildung auf und sind für Messungen daher schlecht geeignet (Abb. 27c).



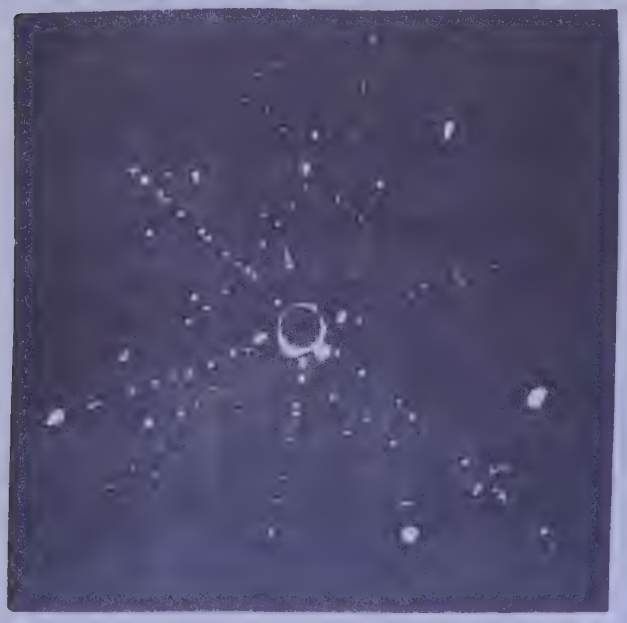



Abb. 27c):

Laue-Diagramm des Bor-Einkristalls in Wachstumsrichtung und ausgerichtet (<111>).

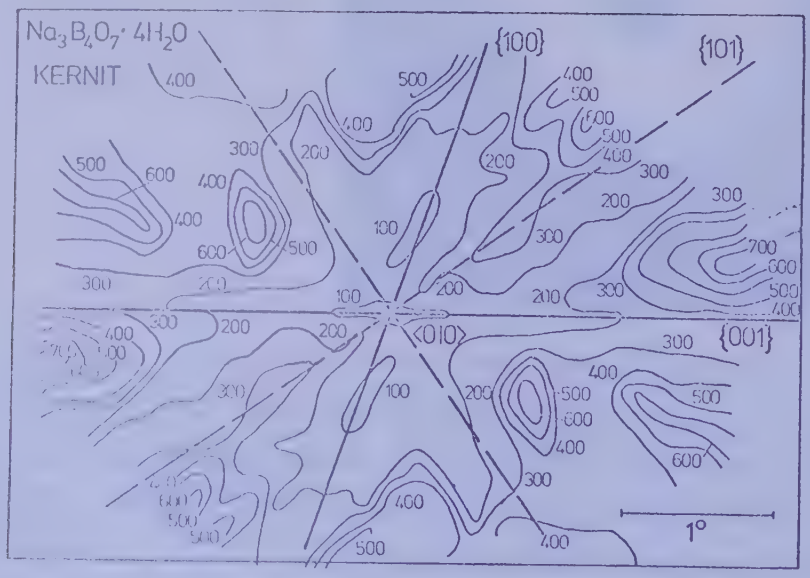



Abb. 40: Blocking-Pattern von Kernit, gemittelt über 2 gleiche Sektoren. Größe der Meßfelder wie Abb. 29.

1 mm große Borcarbid-Kriställchen wurden von einer großen grob kristallinen Tetrabor-Druse abgeschlagen und mit Königswasser gesäubert, anhand der Röntgenbilder (Abb. 27d) wurden die besten Exemplare ausgewählt.

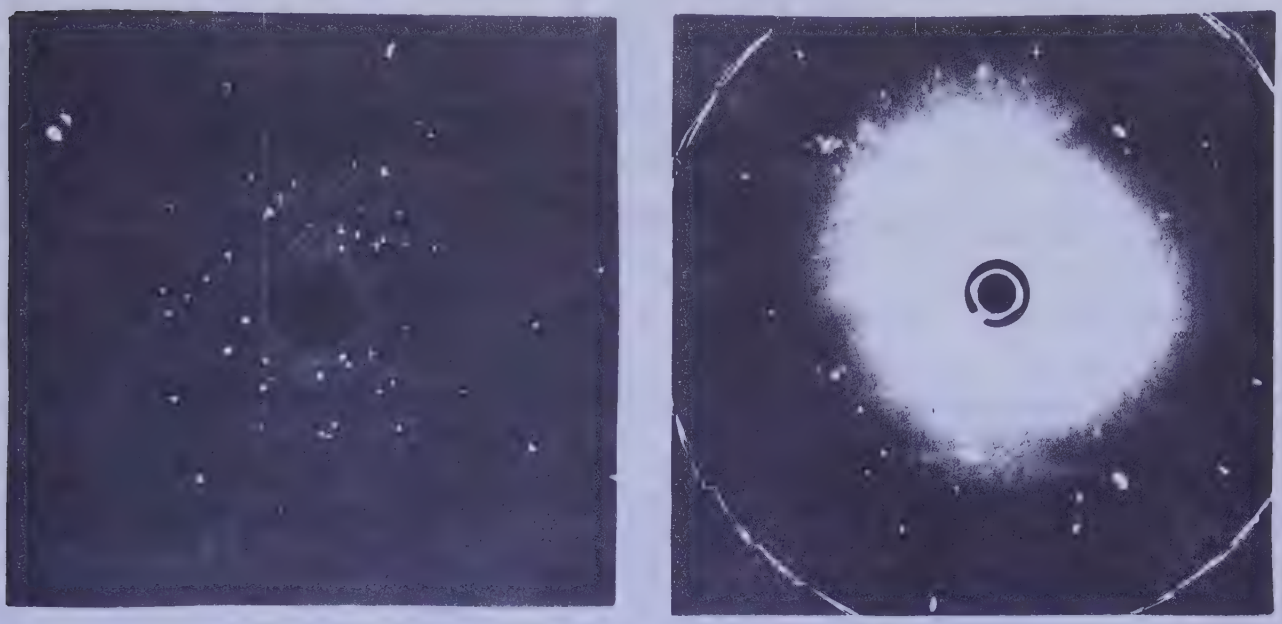
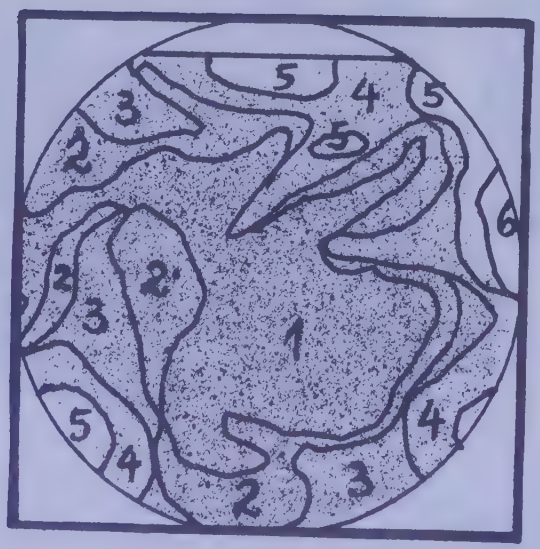


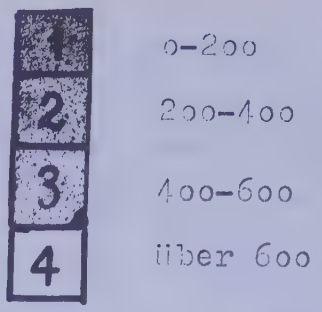
Abb. 27d): Borcarbid-Röntgenaufnahmen. Kristall in Wachstumsrichtung und orientiert (<111>).

Die Blocking-Patterns von Bor und Borcarbid weisen nur unklare längliche Strukturen am Rande eines großen zentralen Dips auf, Abb. 41. Eine eindeutige Zuordnung zur hexagonal-rhomboedrischen Struktur ist nicht möglich. Dies ist auf die schlechte Qualität der verwendeten Exemplare zurückzuführen. Zumindest fällt die Übereinstimmung in der Halbwertsbreite der zentralen Dips von Bor und Borcarbid auf, was auch theoretisch erwartet wird (Tabelle 12). Der linke starke Seitenarm des Bor-Patterns spiegelt möglicherweise die Zwillingsstruktur der Probe wider.

a)



b)



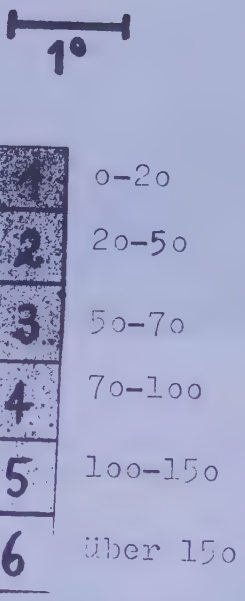




Abb. 41: Ergebnisse der Folienmessungen an a) Borcarbid, b) Bor Auflösung ca. 0,2°, Kristalle in <111>-Richtung.

Tabelle 12: Meßergebnisse von Blocking-Versuchen an borhaltigen Kristallen.

| Kristall | Richtung | Blocking-Winkel | relative Ausbeute % |
|---|---|---|---|
| Kernit | <o1o><br>{oc1}<br>{1oo} | 1,o°<br>o.3°<br>o,3° | 17<br>5o<br>4o |
| Bor | <111> | 1,2° | 1o |
| Borcarbid | <111> | 1,3° | 2o |

Resumé

Es wurde gezeigt, daß die von thermischen Neutronen ausgelösten (n,α)-Reaktionen bei Nukliden mit hohen Wirkungsquerschnitten sehr gut zur Untersuchung festkörperphysikalischer Effekte eingesetzt werden können. Hier wurden insbesondere Versuche zur Abbremskraft, Reichweiten- bzw. Strahlenschadenverteilung, zur Diffusion und zu Channeling und Blocking unternommen. Die Anwendung dieser Experimente liegt einerseits in der Grundlagenforschung (Erweiterung der Kenntnis der Gitterposition von Fremdatomen, Verständnis von Transportmechanismen, Kontrolle bestehender Theorien), andererseits auf dem Gebiet der Fusionsreaktor- und Halbleitertechnologie (Wandprobleme).

Es wurde am Beispiel von LiF und $B_4C$ gezeigt, daß die bestehenden Theorien (Bethe [3], Biersack [4]) die Energieabhängigkeit der Abbremskraft von MeV-α-Teilchen in leichten Bremsmedien nicht genau wiedergeben.

Das nach der Implantation von Li in Nb gemessene Eindringprofil gibt nur bei niedriger Implantationstemperatur die Reichweitenverteilung und bei höheren Temperaturen (ca. 700°C) die Verteilung der bei der Implantation erzeugten Strahlenschäden wider. Höhere Momente der betr. Tiefenverteilungen sind - bis auf einen Faktor 0,77 in der Tiefenskala - konsistent mit neueren theoretischen Vorhersagen (Weissmann, Sigmund [6]).

Die Untersuchung der Diffusion von Lithium in Niob ergab, daß zwei unterschiedlich diffundierende Komponenten existieren. Die auf Zwischengitterplätzen zur Ruhe gekommenen Li-Atome diffundieren schon unterhalb von 500°C, die von Fallen durch Strahlenschäden und an der Oberfläche eingefangenen Atome werden erst oberhalb 900°C beweglich. Da bei erhöhten Temperaturen aufgrund von Ausheilprozessen nur eine begrenzte Zahl von durch die Implantation erzeugten Frenkel-Defekten zur Verfügung steht, weist die gemessene Tiefen- (und damit -Strahlenschaden-)Verteilung stets, unabhängig von der Implantationsdosis, etwa dieselbe Höhe bei gleicher Implantationstemperatur auf. Li-Ausscheidungen in Nb können bei den betrachteten Temperaturen (700°C) somit

ausgeschlossen werden. Beim System Ag(Li) konnte nur ein Diffusionstyp beobachtet werden, es handelt sich wahrscheinlich um Zwischengitterdiffusion. Sie ist schon bei Zimmertemperatur so stark, daß eine exakte Auswertung des Tiefenprofils nicht möglich ist.

Beim Erhitzen lithiumdotierter Niob-Proben an Luft wurden Koorosionseffekte beobachtet, die theoretisch (Dearnalley, [21]) nicht zu erwarten waren.

Die Resultate der Diffusionsmessungen für Li in Nb zeigen in Verbindung mit den von Biersack aufgestellten Formeln [7] für Implantation bei Diffusions- und Erosionseinflüssen, daß Lithium-Ausscheidungen in den Niob-Wänden des künftigen Fusionsreaktors nicht zu erwarten sind, im Gegensatz zu früheren Befürchtungen [22].

Es wurden erstmalig Channeling- und Blocking-Effekte nach (n,α)-Reaktionen erfolgreich untersucht. Hierfür wurden zwei verschiedene Meßanordnungen benutzt. Die Patterns wurden einerseits mit Plastikdetektoren, andererseits mit Halbleiterdetektoren unter verschiedenen Beobachtungsrichtungen aufgenommen. Während die Ergebnisse der Folienmessungen ungefähr theoretischen Erwartungen entsprechen, liefern die mit Halbleiterdetektoren aufgenommenen Messungen schmalere und tiefere Dips als theoretisch erwartet.

Untersuchungen an Germaniumkristallen mit einer die Sättigung überschreitenden Lithiumkonzentration ergaben Blocking-Patterns, die darauf hinweisen, daß viele Li-Atome auf Zwischengitterplätzen sitzen, ein Teil jedoch auch andere Positionen einnimmt.

Auch die in Niob-Einkristalle bei Zimmertemperatur implantierten Lithium-Atome scheinen weitgehend auf Zwischengitterplätzen zu sitzen, wie aus den Channeling-Pattern ersichtlich ist.

Auch Kristalle mit geringer Gittersymmetrie und komplizierter Basis, wie z.B. Kernit, weisen gut ausgeprägte Blocking-Effekte nach (n,α)-Reaktionen mit Bor auf. Während niedrigindizierte Ebenen ohne weiteres identifizierbar sind, ist die Interpretation schwächerer planarer Strukturen problematisch. Bor und Borcarbid, deren Basis genauso kompliziert wie die von Kernit ist, zeigen nur einen gut ausgeprägten axialen Dip, jedoch keine planaren. Das ist wahrscheinlich in diesem Fall auf die schlechte Qualität der Kristalle zurückzuführen.

Danksagung

Diese Arbeit entstand im Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin GmbH und an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig.

Herrn Priv.-Doz. Dr. J. Biersack gilt mein besonderer Dank für wertvolle Anregungen und Diskussionen, für seine Hilfsbereitschaft bei den Tiefenprofil - Messungen, für die Herstellung dotierter Kristalle sowie das Überlassen von bisher unveröffentlichten Formeln.

Herrn Prof. Dr. Heintz und Prof. Dr. Wagner von der PTB gilt mein Dank für die Bereitstellung eines Arbeitsplatzes am Reaktor FMRB und für ihre große Hilfsbereitschaft.

Herrn U. Fischmann danke ich für seine Mitwirkung bei der Planung und für den Bau des Goniometers.

Herrn Dr. Frey und Dr. Adam von der TU Berlin sowie Herrn Dr. Voigt von der PTB Braunschweig danke ich für die Bereitstellung der Röntgenapparate zur Aufnahme der Laue-Diagramme.

Den Mitarbeitern der Reaktorabteilungen in Braunschweig und Berlin danke ich für ihre Ratschläge und Unterstützung bei der Durchführung der Versuche.

Den Herren J. Wisotzki und Mr. Williams von der Firma Metals Research sowie Herrn E. Polig von der KFA Karlsruhe danke ich für die Überlassung des Quantimet 720 zur Auswertung der Folien.

Herrn E. Polig und Herrn Dr. Albertz, PTB danke ich weiterhin für Diskussionen zur Methode der Alpha-Teilchen-Registrierung in Folien.

Herrn U. Morfeld danke ich für die Herstellung lithiumdotierter Germaniumkristalle.

Außerdem danke ich dem Elektroschmelzwerk Kempten für die Überlassung von Borcarbid-Proben, der Deutschen Borax-Gesellschaft für die Überlassung von Kernit- und Borax-Kristalen sowie dem Consortiom für Elektrochemische Industrie für die verbilligte Abgabe eines Bor-Kristalls.

Schließlich bin ich Frau Bader vom HMI Berlin für die Herstellung der mikroskopischen Schliffbilder von Niob und Silber zu Dank verpflichtet. Herr Dr. Roth stellte mir freundlicherweise sein Programm zur Berechnung der Abbremskräfte zur Verfügung. Herrn Dipl.-Phys. Santner danke ich für seine tätige Mithilfe bei dem Protonenrückstreu-Experiment am Nb.

Literatur


1. Nuclear Data Sheets, Sets 5 and 6: Energy Levels of Light Nuclei (1962), Nat. Academy of Science, Washington. NCR 61-5,6.
2. J. Lindhard, M. Scharff, Phys. Rev. 124 (1961) 128.
3. J.P. Biersack, D. Fink, Proceed. Intern. Conf. on "Atomic Collisions in Solids", Gatlinburg , 1973.
   J.B. Biersack, interner Bericht, HMI 1966.
4. H. Bethe, Ann. Phys. 5 (1930) 325.
5. H. Schiøtt, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 35 (1966), No.9.
6. R. Weissmann, P. Sigmund, Rad. Effects 19 (1973) 7.
7. J.P. Biersack, Rad. Effects 19 (1973) 249.
8. C. Kittel, Einführung in die Festkörperphysik, R. Oldenbourg, München/Wien (1969), p. 696.
9. H.J. Smith, Rad. Effects 18 (1973) 65 und
   H.J. Smith, G.H. van Wyk, Proceedings of the International Conference on Ion Beams to Metals, Albuquerque, Oct.2-5,1973.
10. J.K. Hirvonen, W.H. Weisenberger, R.A. Westmoreland, Appl. Phys. Lett. 21 (1972) 37.
11. R.S. Blewer, Proceedings of the International Conference on Ion Beams to Metals, Albuquerque, Oct. 2-5, 1973.
12. E.V. Kornelsen, pers. Mitt. (1973).
13. G.N. Dubinin, G.P. Benediktova, M.G. Karpman, zitiert in: Diff. Data 4 (1970) 437.
14. S. Blow, AERE-R 6845, Harwell (1971).
15. J.P. Biersack, W. Diez, Phys. stat. sol. 32 (1969) 247.
16. W.F. Brehm, Diff. Data 4 (1970) 54.
17. W.D. Wilson, C.L. Bisson, Rad. Effects 19 (1973) 53.
18. W.D. Wilson, R.A. Johnson, Proceedings of the International Conference on Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects, Plenum Press, N.Y. (1972), 375.
19. E.V. Kornelsen, Veröffentlichung in Rad. Effects geplant, zitiert bei [17].
20. M. Hansen, Constitution of Binary Alloys, Mc Graw Hill Book Co., N.Y. (1958).

21. G. Dearnalley, Proceedings of the International Conference on Ion Beams to Metals, Albuquerque, Oct. 2-5, 1973.
22. F.K. Altenhein, H. Andresen, Ch. Donner, W. Lutze, H. Migge, 7th Symposium on Fusion Reactor Technology, Grenoble, Oct. 24-27 (1972) 137.
23. M. Kaminski, pers. Mitt. (1973).
24. W. Brandt, Sci. Am. 218 (1968) 91.
25. G. Lindhard, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 34 (1969),Nr.14.
26. C. Varelas, Diss. Techn. Univ. Berlin (1969) D83 und C. Varelas, J.P. Biersack, Nucl, Instr. Meth. 79 (1970) 213.
27. S.T. Picraux, F.L. Vook, Proceedings of the Internat. Conference on Ion Beams to Metals, Albuquerque, Plenum Press (1973) and Proceedings of the International Conference on Survace Effects in Controlled Thermonuclear Fusion Devices and Reactors, Argonne Nat. Lab., 10.-12. Jan. 1974.
28. S.U. Campisano, G. Foti, F. Grasso, I.F. Quercia, E. Rimini, Rad. Effects 13 (1972) 23.
29. J.H. Barret, Phys. Rev. B, 3 (1971) 1527.
30. J.A. Davies, J. Denhartog, J.L. Whitton, Phys. Rev. 165 (1968) 345.
31. J.A. Picraux, J.A. Davies, L. Eriksson, N.G.E. Johansson, J.W. Mayer, Phys. Rev. 180 (1969) 873.
32. L.M. Howe, S. Schmid, Can. J. Phys. 49 (1971) 2321.
33. Internationale Tabellen zur Bestimmung von Kristallstrukturen 2 (1935) 574.
34. R.S. Nelson, AERE R 5743 (1968).
35. J.U. Andersen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 36 (1967),Nr.7.
36. K. Komaki, F. Fujimoto, M. Ishii, H. Nakayama, Phys. Lett. 37a (1971) 271.
37. J.P. Biersack, pers. Mitt. (1972), unveröffentlicht.
38. W.D. Wilson, C.L. Bisson, Rad. Effects, in Veröffentlichung, C.L. Bisson, W.D. Wilson, Proceedings of the International Conference on Ion Beams to Metals, Albuquerque, Plenum Press 1973.
39. S.U. Campisano, G. Foti, F. Grasso, M. Lo Savio, E. Rimini, Rad. Effects 13 (1972) 157.
40. M. Varnagy, J. Csikai, S. Scegedi, S. Nagy, Nucl. Instr. Meth. 89 (1971) 27.

41. D. Fink, Nucl. Instr. Meth. 107 (1973) 615.
42. E. Piesch, Zeiss Inform. 18 (1970) 76, 58.
43. D. Fink, U. Fischmann, Nucl. Instr. Meth. 100 (1972) 549.
44. W.G. Albertz, PTB-Mitteilungen 3 (1973) 161.
45. J.P. Biersack, Pers. Mitt. (1972).
46. R.W. Amberger, Z. Phys. 236 (1970) 352.
47. Y. Akasaka, K. Horie, Reports on Progress in Channeling Studies in Japan, Research Group of Channeling of Japan, Secretary N. Itoh, Nagoya Univ. (1972), p. 73.
48. H. Binnenbruck, A. Hausen, P. Runow, H. Werheit, Vortragsmanuskript für die Deutsche Physikal. Ges., Sitzung H 1-II, 7.4.1970 (unveröffentlicht, pers. Mitt.).
49. W.K. Lin, H.G. Olsen, D. Powers, Phys. Rev. B, 8 (1973) 1881.
50. J.P. Biersack, Z. Phys. 211 (1968) 495 und HMI-B 37 (1964).
51. E.V. Kornelsen, Rad. Eff. 13 (1972) 227.

## Lebenslauf

| | |
|---|---|
| 13. 7.1943 | geboren in Berlin<br>Vater: Wilhelm Fink, selbst. Kaufmann<br>Mutter:Gisela Fink, geb. Draheim |
| 1949 - 1954 | Grundschule, Berlin |
| 1954 - 1962 | Oberschule, Berlin |
| 1. 3.1962 | Abitur |
| 1.4.-1.8.1962 | Industrie-Praktikum bei Siemens & Halske, Berlin |
| WS 1962-SS1969 | Studium der Physik an der Freien Universität Berlin |
| 25. 5.1965 | Diplom-Vorprüfung |
| Jan. 1967 - Mai 1969 | Diplomarbeit am Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung, Berlin<br>Thema der Arbeit:<br>"Untersuchung zum Knock-out-Effekt (Einzel- und Aggregat-Knock-out; Reemission)" |
| 13. 5.1969 | Diplom-Prüfung |
| Sept. 1969 - Mai 1974 | Doktorarbeit am Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung, Berlin<br>Durchführung der Versuche an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (Braunschweig) nach Ausfall des Berliner Reaktors im Sommer 1971. |
| 15. 2.1974 | Hochzeit mit Chien-Ming Fink, geb. Chang. |